



Excitation du 201 Hg dans les plasmas produits par laser

Maxime Comet

► To cite this version:

Maxime Comet. Excitation du 201 Hg dans les plasmas produits par laser. Physique Nucléaire Expérimentale [nucl-ex]. Université de Bordeaux, 2014. Français. NNT : 2014BORD0458 . tel-01161471

HAL Id: tel-01161471

<https://theses.hal.science/tel-01161471>

Submitted on 8 Jun 2015

HAL is a multi-disciplinary open access archive for the deposit and dissemination of scientific research documents, whether they are published or not. The documents may come from teaching and research institutions in France or abroad, or from public or private research centers.

L'archive ouverte pluridisciplinaire **HAL**, est destinée au dépôt et à la diffusion de documents scientifiques de niveau recherche, publiés ou non, émanant des établissements d'enseignement et de recherche français ou étrangers, des laboratoires publics ou privés.



THÈSE EN COTUTELLE

Présentée à

L'UNIVERSITÉ DE BORDEAUX

ÉCOLE DOCTORALE DES
SCIENCES PHYSIQUES ET DE L'INGÉNIEUR

Par **Maxime COMET**

pour obtenir le grade de

Docteur

Spécialité : Astrophysique, Plasmas et Corpuscules

**Excitation du ^{201}Hg dans
les plasmas produits par laser**

Thèse dirigée par MM Franck GOBET et Vincent MÉOT

préparée au

Centre d'Études Nucléaires de Bordeaux Gradignan
Commissariat à l'Énergie Atomique de la DAM Ile de France

Devant la commission d'examen formée de :

<i>Président :</i>	Vladimir TIKHONCHUK	Professeur - CELIA - Bordeaux
<i>Rapporteur :</i>	Dominique VERNHET	Directrice de Recherche - INSP - Paris
<i>Rapporteur :</i>	Patrick RENAUDIN	Chef de laboratoire - CEA/DAM - Ile de France
	Stéphane GRÉVY	Directeur de Recherche - CENBG - Bordeaux
	Jean-Christophe PAIN	Chef de laboratoire - CEA/DAM - Ile de France
<i>Directeurs :</i>	Franck GOBET	Professeur - CENBG - Bordeaux
	Vincent MÉOT	Chef de laboratoire - CEA/DAM - Ile de France

Remerciements

Je tiens à remercier tout d'abord Philippe Moretto, directeur du CENBG et Éric Bauge, chef du service de Physique Nucléaire du CEA/DAM, pour m'avoir accueilli au sein de leur laboratoire et service respectif. Merci aux personnes des services informatique, mécanique et électronique sans qui un laboratoire ne pourrait pas tourner. Merci à Nadine et Véronique pour leur disponibilité et pour leur aide dans toutes les tâches administratives.

Je remercie les membres du jury d'avoir accepté de juger de ce travail de thèse. Merci à Vladimir Tikhonchuk d'avoir présidé le jury, à Dominique Vernhet et Patrick Renaudin pour avoir rapporté cette thèse. Merci à Stéphane Grévy pour la lecture minutieuse du manuscrit malgré le fait que tu ne sois pas du domaine des plasmas chauds. Je remercie Jean-Christophe Pain qui, durant la thèse, a été d'une aide précieuse pour la compréhension des différents modèles de physique atomique dans les plasmas chauds. Je le remercie également d'avoir accepté de faire partie du jury.

Je remercie tout particulièrement mes deux directeurs de thèse, Franck et Vincent, de m'avoir encadré durant ces trois années et de m'avoir formé à la recherche scientifique. Merci à Franck d'avoir toujours été disponible pour discuter. Ces discussions m'ont permis de résoudre de nombreux problèmes. Sa rigueur scientifique ainsi que sa pédagogie m'ont apporté énormément durant ma formation. Merci à Vincent pour toutes les discussions physiques que l'on a eues ensemble, que ce soit autour d'un café (et d'un chocolat) ou "dans le bocal", sur des sujets divers et variés. Ses connaissances en physique fondamentale m'ont beaucoup apporté et m'ont aidé à me poser les bonnes questions. Je te remercie aussi d'être venue me chercher de nombreuses fois à la gare de Massy-TGV lors de mes séjours à BIII.

Merci à Gilbert et Pascal, résidents permanents du "bocal", pour toutes les discussions et débats et pour tous les bons moments que l'on a pu passer ensemble. Le trio infernal du "bocal" va me manquer !

Merci à Fazia pour m'avoir accueilli au sein de son groupe. Sa bonne humeur, sa disponibilité et ses connaissances scientifiques m'ont été très utiles durant ces trois ans. Merci aussi à Medhi et Maud pour leur conseil, leur gentillesse et toutes les différentes relectures que vous avez pu faire. Enfin, les débats avec vous sur les films sortis au cinéma vont maintenant me manquer.

Merci à Laurent pour toutes les discussions, mais aussi pour ses conseils et commentaires suites aux différentes répétitions orales auxquelles tu as pu assister.

Je remercie chaleureusement mes colocataires de bureau. Tout d'abord, Thomas et David, colocataire dans le bureau au CENBG, avec qui j'ai passé de chouettes moments durant ces trois ans. Thomas, je pense que tu restes le maître incontesté du basket de bureau. De plus, les discussions autour d'un petit verre après le travail, afin de refaire le monde (et la physique aussi !) vont me manquer ! Merci pour tous ces bons moments. Merci également à David, arrivé en thèse en même temps que moi

dans le groupe, élu maître incontesté de la machine à café, merci pour tous les cafés du matin préparés avec soin. Je crois que tu nous as donné de mauvaises habitudes ! Merci pour toutes les discussions et pour t'as gentillesse. Merci à Olivier et Aurore, post-doc à BIII pour tous les débats scientifiques que nous avons eues ensemble, pour leur gentillesse et leur conseil.

Merci à tous ceux que je n'ai pas cité ici mais que j'ai côtoyé durant ces trois années sur les deux laboratoires.

Je tiens bien sûr à remercier ma famille, mon père, ma mère et mon frère pour leur soutien affectif, la relecture de manuscrit et l'organisation du pot. Merci à toute la famille pour les différents soutiens que j'ai reçus et pour leur message d'encouragement, ils m'ont énormément fait plaisir ! Enfin, je remercie Coralie pour son soutien. Sans toi, je pense que je n'en serai pas là aujourd'hui.

Table des matières

Introduction	7
---------------------	----------

1 L'excitation nucléaire dans les plasmas lasers : le cas du ^{201}Hg	11
--	-----------

1.1	Excitations nucléaires dans les plasmas	12
1.1.1	Les processus électromagnétiques d'excitation nucléaire	12
1.1.2	Tentatives de mise en évidence de l'excitation nucléaire dans un plasma : les cas du ^{181}Ta et du ^{235}U	15
1.2	Le cas du Mercure 201	18
1.2.1	Présentation du noyau	18
1.2.2	Calcul des taux d'excitation avec le code ISOMEX	19
1.3	Détails sur l'effet NEET	20
1.3.1	Physique atomique pour l'effet NEET	21
1.3.2	Expression théorique de la probabilité NEET	23
1.3.3	Observation de l'effet NEET en cible solide	26
1.3.4	L'effet NEET dans les plasmas	29
1.4	Les enjeux de la thèse	33

2 Excitation du ^{201}Hg par effet NEET dans un plasma à l'équilibre thermodynamique	35
---	-----------

2.1	Le modèle de l'Atome-Moyen	36
2.1.1	Description du modèle	36
2.1.2	Calcul du taux NEET dans le cadre de l'AMG sur le ^{201m}Hg	44
2.1.3	Conclusion de la partie	50
2.2	Comparaison avec un code de physique atomique détaillé	50
2.2.1	Principe d'un calcul MCDF	51
2.2.2	Comparaison avec l'AMG sur un spectre radiatif	52
2.2.3	Conclusion de la partie	59
2.3	Vers une approche intermédiaire : le code ADAM	60
2.3.1	Principe	60
2.3.2	Étude des approximations	65
2.3.3	Comparaisons des différents modèles (AMG/ADAM/MCDF) sur un spectre radiatif	71
2.3.4	Calcul du taux d'excitation nucléaire par effet NEET	75
2.3.5	Conclusion de la partie	82
2.4	Conclusion du chapitre	83

3	Estimation du nombre d'isomères produits lors d'une interaction laser	85
3.1	Généralités sur l'interaction laser-matière en régime nanoseconde . . .	85
3.1.1	Description d'un plasma créé par laser	85
3.1.2	Physique atomique dans l'interaction laser-matière	89
3.1.3	Simulation de l'interaction laser-matière	93
3.2	Estimation du nombre d'isomères à la fin de l'impulsion laser	96
3.2.1	Couplage du code Chivas avec les taux d'excitation par effet NEET	97
3.2.2	Calcul du nombre d'isomères produits à la fin de l'impulsion laser	98
3.2.3	Discussion des résultats	109
3.3	Conclusion du chapitre	110
4	Dispositif expérimental pour la mesure des états de charge asymptotiques dans un plasma produit par laser	111
4.1	Mesures des distributions d'ions dans leur état asymptotique et problèmes associés	112
4.1.1	Parabole Thomson ou déviateur électrostatique ?	112
4.1.2	Déviateur électrostatique	112
4.1.3	Le problème des effets de charge d'espace	114
4.1.4	Le problème de la détection des paquets d'ions	115
4.1.5	Objectifs de ce travail	115
4.2	Description du dispositif expérimental	116
4.2.1	Laser	119
4.2.2	Collecteur de charge	121
4.2.3	Alignement de la cible	122
4.2.4	Déviateur électrostatique	126
4.3	Le détecteur WEM	129
4.3.1	Présentation du détecteur	129
4.3.2	Recherche d'un domaine de polarisation	130
4.3.3	Mesure absolue du nombre d'ions	132
4.3.4	Détermination de la fonction de réponse	137
4.4	Transmission du déviateur	143
4.4.1	Détermination des distributions ioniques équivalentes	143
4.4.2	Signal collecteur reconstruit et comparaison avec la mesure . .	152
4.4.3	Mesure de la transmission du déviateur en fonction de l'énergie et de l'intensité surfacique des ions	154
4.5	Caractéristiques des ions dans leur état asymptotique	157
4.5.1	Distribution en énergie corrigée et fraction ionique	157
4.5.2	La recombinaison électronique	163

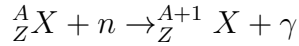
4.5.3	Vers un choix de tensions du déviateur pour des études à plus hautes intensités	165
4.6	Conclusion du chapitre	169
Conclusion		171

A	Détermination des éléments de matrice nucléaires à partir de la mesure de la demi-vie de l'état	185
B	Description du modèle de l'atome moyen	187
C	Approximation binomiale de la probabilité des configurations	189

Introduction

Connaître le taux de peuplement des états nucléaires dans les plasmas est un problème ouvert qui fait l’objet d’études depuis quelques dizaines d’années. Ce problème est commun à différentes thématiques de physique allant de l’astrophysique, au plasma de fusion au laboratoire ou encore à la physique nucléaire fondamentale.

Ainsi, en astrophysique, la compréhension de l’origine des éléments a fait un bond en avant en 1957 lorsque Geoffrey et Margaret Burbidge publient un article où apparaît une formulation détaillée de la nucléosynthèse stellaire [Bur57]. Dans cet article, ils mettent en avant deux processus, appelés le processus-*s* et le processus-*r*, qui sont responsables de la production des éléments plus lourds que le fer. Ces éléments sont produits par capture successive d’un neutron qui se désexcite ensuite par émission de γ (cette réaction est notée (n,γ)) :



Dans le processus-*s* (le *s* correspond à *slow*), la capture du neutron est lente, c’est-à-dire que l’intervalle de temps entre deux captures neutroniques (n,γ) est plus grande que la désintégration β . Les éléments ainsi créés suivent la vallée de la stabilité jusqu’au ${}^{209}\text{Bi}$. Ce processus ne permet d’interpréter que la moitié des abondances des éléments.

L’autre moitié est créée par le processus-*r* (*r* pour *rapid*) qui a lieu essentiellement lors de l’explosion des étoiles en supernovæ. L’important flux de neutrons produit lors de l’explosion conduit à une capture rapide de neutrons avant que la désexcitation nucléaire par décroissance β n’ait lieu.

Avec ces deux processus, les astrophysiciens tentent notamment de reproduire les abondances des différents isotopes. Cependant, les sections efficaces (n,γ) sont différentes selon que l’état nucléaire est un état fondamental ou un état excité [Kap06]. Il est ainsi important de quantifier les taux de populations des états excités nucléaires pour un plasma à une température et densité donnée. A ce jour, les modèles sont ajustés aux mesures en utilisant un facteur, appelé *stellar enhancement factor* (SEF), utilisé pour pondérer les sections efficaces (n,γ) [Ber14]. Ce facteur tient compte de l’influence des états nucléaires excités qui sont supposés à l’équilibre thermodynamique avec l’état fondamental.

Dans le cadre des plasmas de fusion en laboratoire et plus particulièrement dans l’étude de la FCI (Fusion par Confinement Inertiel), l’implosion de capsules en Deutérium-Tritium permettent d’atteindre des densités et des températures équivalentes à celles que l’on peut retrouver dans le soleil. Actuellement au NIF (National Ignition Facility) aux Etats-Unis et bientôt au LMJ (Laser MegaJoule) en France, sont produites à partir de ces capsules des densités de neutrons supérieures à 10^{21} neutrons/cm³. Leur caractérisation est issue de diagnostics d’activation nucléaire [Ber14]. Cet environnement est propice à la mesure de sections efficaces (n,γ) dans

des conditions équivalentes à celles retrouvées dans les milieux stellaires dans lesquels se déroulent le processus-*s* [Ber14]. Là encore, l'influence des populations des états nucléaires excités doit être estimée.

Par exemple, citons le cas du ^{171}Tm ($t_{1/2}=1,91$ années) qui est un point d'embranchement du processus-*s*. La connaissance de ces points d'embranchement pour lesquels le taux de capture neutronique est proche de son taux de désexcitation β^- , est un élément important pour une bonne description du processus-*s*. Or, le ^{171}Tm possède un état isomère à 5 keV de durée de vie 4 ns. A une température de 30 keV, environ 45 % des ^{171}Tm doivent être dans l'état excité à l'équilibre thermodynamique. L'introduction de ^{171}Tm dans une cible FCI permettrait de quantifier l'effet de ces états excités sur le ^{171}Tm . Cependant, le fonctionnement d'une cible FCI est très rapide (quelques picosecondes) et l'état excité n'est pas à l'équilibre avec l'état fondamental. Il faut alors décrire les processus d'excitation et de désexcitation.

Parmi ces processus, ceux faisant intervenir le couplage entre le noyau et le cortège électronique vont être fortement modifiés par les conditions thermodynamiques qui règnent dans le plasma. En effet, dans un plasma dense et chaud, les collisions des ions avec les électrons libres et le rayonnement photonique vont affecter l'ionisation et donc le couplage atome-noyau. La durée d'un état nucléaire peut alors être modifiée si celui-ci décroît par le processus de conversion dans lequel un électron du cortège est émis lors de la transition nucléaire. Si l'ionisation augmente, la désexcitation par conversion interne peut alors être réduite voire inhibée, les électrons liés n'étant plus disponibles. L'effet du plasma sur le noyau ne se limite pas à sa désexcitation par conversion interne. D'autres phénomènes physiques peuvent modifier sa désexcitation ou même l'exciter par interaction avec les particules du plasma. Ainsi, un noyau peut s'exciter quand l'atome capture un électron libre ou quand un électron effectue une transition d'une couche atomique vers une autre. Un électron libre du plasma peut être diffusé par le noyau en lui cédant ou en lui prenant de l'énergie d'excitation. Ainsi, la durée de vie qui résulte de tous ces processus, tant en excitation qu'en désexcitation, peut être fortement perturbée par la présence du plasma.

Différents auteurs ont proposé d'utiliser les plasmas pour accélérer la désexcitation d'isomères nucléaires à vie longue [Ber91, Ola97, Gos04]. Par exemple, l'isomère du ^{84m}Rb , situé à 463 keV, a une durée de vie de 20 minutes. Dans un plasma chaud, le niveau isomère de 20 minutes peut être excité vers un niveau situé à 3,5 keV au-dessus qui se désexcite très rapidement (9 ns) par une transition vers un niveau de beaucoup plus basse énergie. Dans un plasma de 1 keV, l'isomère a une durée de vie apparente d'environ quelques microsecondes [DP14].

Ce type de processus (excitation suivie d'une désexcitation beaucoup plus rapide) a des implications fortes pour certains éléments produits lors de la nucléosynthèse. C'est le cas par exemple du noyau de ^{176}Lu , formé par capture (n,γ), qui est un élément produit dans la nucléosynthèse stellaire lors du processus-*s*. Il possède un état fondamental ($J^\pi=7^-$) dont la durée de vie est de $3,8\times 10^{10}$ ans. Cet état décroît vers le ^{176}Hf par désintégration β^- . Cet isotope a ainsi longtemps été considéré comme un très bon chronomètre stellaire du fait de sa grande durée de vie. Cependant, le ^{176}Lu

possède un état à 839 keV au dessus du fondamental ($J^\pi=5^-$) qui peut décroître vers un état isomère ($J^\pi=1^-$) de durée de vie 3,7 heures qui lui-même décroît vers ^{176}Hf par décroissance β^- .

N. Klay et al [Kla91] ont ainsi montré que la prise en compte du processus de photoexcitation modifiait la durée de vie effective de l'état fondamental du ^{176}Lu dans les plasmas stellaires. Dans ces plasmas, la distribution de photons peut être de plusieurs centaines de keV permettant l'excitation du ^{176}Lu de l'état fondamental vers l'état à 839 keV qui décroît ensuite vers l'état isomère dont la durée de vie est beaucoup plus courte. Par exemple, pour des températures supérieures à 20 keV, la demi-vie effective de l'état fondamental décroît de 9 ordres de grandeurs rendant caduc l'utilisation du ^{176}Lu comme chronomètre. Ce phénomène est aussi observé dans le cas d'autres éléments tel que le ^{26}Al ou le ^{34}Cl [Coc99].

L'étude de l'influence des propriétés nucléaires dans un environnement où la matière est à l'état de plasma peut être entreprise à l'aide des lasers de puissance. Le développement rapide des lasers permet actuellement d'obtenir des plasmas dont les caractéristiques se rapprochent des conditions thermodynamiques qui peuvent être retrouvées dans les plasmas astrophysiques. Dans ce but, l'utilisation des lasers de puissance semble bien adaptée.

C'est dans ce contexte que le laboratoire L2EN (Laboratoire d'Excitation des États Isomères) du CEA/DAM/DIF a développé un modèle, appelé ISOMEX, qui inclut l'ensemble des phénomènes d'excitation et de désexcitation des états nucléaires. Afin de valider ces taux, le groupe ENL (Excitations Nucléaires dans les plasmas) du Centre d'Études Nucléaires de Bordeaux Gradignan et le groupe de Bruyères-le-Châtel collaborent depuis une dizaine d'années au développement d'expériences permettant la mise en évidence de l'excitation nucléaire dans les plasmas produits par laser.

Le noyau de mercure 201 est un candidat prometteur pour ce type d'expérience. Son premier état nucléaire, de très basse énergie (1,565 keV au dessus du fondamental) pourrait être excité dans les plasmas par laser. L'étude de ce noyau a commencé en 2007 avec la mesure de la demi-vie de l'état isomère par V. Méot et collaborateurs [Mé07].

L'objectif de cette thèse est d'étudier la faisabilité d'une expérience d'interaction d'un laser de puissance avec une cible de mercure en vue d'observer l'excitation du premier état excité du ^{201}Hg .

Plan de la thèse :

Le premier chapitre présente de façon générale l'excitation nucléaire dans les plasmas et les processus qui sont impliqués. Après une brève revue de deux expériences qui ont été conduites par la collaboration CEA/DAM et CENBG pour mettre en évidence l'excitation nucléaire dans un plasma, nous présenterons le noyau de mercure 201 ainsi que ses caractéristiques. Nous insisterons tout particulièrement sur le processus NEET (Nuclear Excitation by Electronic Transition). D'après

le modèle ISOMEX, ce processus domine dans l'excitation du ^{201}Hg dans les plasmas.

Le deuxième chapitre est consacré au calcul du taux d'excitation par effet NEET dans un plasma à l'équilibre thermodynamique. La validité des modèles utilisés sera discutée. Nous présenterons le modèle de physique atomique basé sur l'atome-moyen qui est utilisé dans ISOMEX pour calculer le taux d'excitation par effet NEET. Nous déterminerons les zones de validité de ce modèle. Nous présenterons un code de calcul que nous avons développé pour vérifier les approximations faites dans ISOMEX. Ceci nous permettra d'attribuer un intervalle de confiance au taux d'excitation par effet NEET.

Le troisième chapitre est dédié à la détermination du nombre d'isomères que l'on peut espérer former lors d'une interaction laser avec la matière. Nous décrirons les aspects généraux de l'interaction laser matière, à savoir les différentes zones du plasma créé ainsi que la description de la physique atomique au sein de ces zones. Les calculs de taux d'excitations par effet NEET calculés dans le chapitre 2 seront couplés avec un code hydrodynamique afin de prédire le nombre d'isomères créés.

Le quatrième chapitre présente le développement et la caractérisation d'un dispositif expérimental qui permet de poser les bases expérimentales en vue d'une expérience de mise en évidence de l'excitation nucléaire du ^{201}Hg dans les plasmas.

L'excitation nucléaire dans les plasmas lasers : le cas du ^{201}Hg

La description de l'excitation nucléaire dans un plasma est complexe en raison de l'imbrication de processus de physique nucléaire, de physique atomique et de physique des plasmas. Parmi les différents mécanismes d'excitation nucléaire ayant lieu dans un plasma, on distingue les processus directs, la diffusion inélastique d'une particule libre (électron, photon, ion) du plasma sur le noyau, des processus indirects qui mettent en jeu le cortège électronique. Dans ce chapitre, nous nous limiterons à la description des différents processus électromagnétiques qui peuvent amener à l'excitation d'un noyau dans un plasma.

Depuis plus de trente ans, différents laboratoires ont tenté d'observer l'excitation d'un noyau dans un plasma. La mise en évidence expérimentale est difficile à cause des faibles valeurs des sections efficaces nucléaires devant les sections efficaces atomiques. En effet, rappelons que le rapport de la surface de l'atome sur celle du noyau est de l'ordre de 10^8 ! Un moyen d'améliorer le rapport signal sur bruit est de séparer en temps l'émission du plasma et le signal recherché. L'utilisation d'isomères (état nucléaire de grande durée de vie) semble indispensable. En 1979, Izawa et al. [Iza79] ont annoncé avoir observé l'excitation du premier niveau isomérique ($t_{1/2}=27$ minutes) du ^{235}U dans un plasma chauffé par un laser CO_2 . Plus récemment, en 1999, A. V. Andreev et al. [And99] ont observé un signal retardé après l'interaction d'un laser femtoseconde sur une cible de tantale. Ces deux résultats ont été infirmés par d'autres groupes à travers le monde [Aru91][Cla04][Gob08]. Dans ce chapitre, nous ferons la synthèse des études menées sur ces deux noyaux, l' ^{235}U et le ^{181}Ta , pour lesquels des tentatives de mise en évidence de l'excitation nucléaire ont déjà été entreprises. Ceci nous amènera à présenter le noyau de mercure 201 (^{201}Hg) comme un nouveau candidat prometteur pour ces études.

A partir des résultats du modèle ISOMEX, nous montrerons que le processus NEET (Nuclear Excitation by Electron Transition) est le processus qui domine l'excitation du ^{201}Hg dans un plasma. Nous reviendrons en détail sur ce processus. Nous présenterons les différentes grandeurs qui permettent de calculer la probabilité d'exciter un état nucléaire par effet NEET. Ce processus ayant été mis en évidence en utilisant des faisceaux de particules monoénergétiques sur une cible solide d' ^{197}Au [Kis06], d' ^{189}Os [Ahm00] et d' ^{193}Ir [Kis05], une comparaison des probabilités de réaliser l'effet NEET expérimentales et théoriques sera ensuite exposée. Enfin, la dernière partie sera consacrée plus particulièrement à la description de l'effet NEET dans les plasmas.

1.1 Excitations nucléaires dans les plasmas

1.1.1 Les processus électromagnétiques d'excitation nucléaire

Dans les plasmas, les processus du premier et du second ordre en α^1 pouvant mener à des excitations nucléaires sont au nombre de quatre : la photo-excitation, la diffusion inélastique d'électrons, et deux processus faisant intervenir le couplage entre le noyau et son cortège électronique : l'effet NEEC (Nuclear Excitation by Electron Capture) et l'effet NEET (Nuclear Excitation by Electron Transition).

Dans la littérature, très peu de travaux théoriques existent pour le calcul des taux d'excitation nucléaire dans les plasmas. En 1978, Doolen a décrit, en utilisant le modèle de l'atome moyen [Roz72], le processus de photoexcitation et le processus NEEC pour un plasma à l'équilibre thermodynamique [Doo78]. En 1999, Harston et Chemin [Har99] ont calculé le taux d'excitation du ^{235}U en utilisant le modèle collisionnel-radiatif de Colombant et Tonant [Col73]. En 2004, Tkalya a repris les différents processus d'excitation dans un plasma [Tka04]. Cependant, le modèle de physique atomique utilisé est rudimentaire et les taux obtenus sont parfois surestimés de 14 ordres de grandeur ! En 2004, Morel et al. [Mor04] ont poursuivi le travail de Doolen en introduisant une description plus pertinente des transitions atomiques afin de pouvoir décrire l'effet NEET. Ce dernier travail a abouti au modèle ISOMEX, développé depuis plus d'une dizaine d'années au CEA/DIF par G. Gosselin et al., qui permet de calculer les taux d'excitation nucléaire des processus électromagnétiques dans les plasmas. Dans ce modèle, les propriétés atomiques des ions du plasma sont déterminées par l'atome-moyen relativiste [Roz72] à l'équilibre thermodynamique. Nous reviendrons en détail sur ce modèle dans le chapitre 2.

1.1.1.1 Les processus directs

La photo-excitation

Dans ce processus d'excitation, un photon rayonné par le plasma peut être absorbé par le noyau et l'exciter. L'énergie du photon doit être exactement égale (à la largeur près de l'état nucléaire) à l'énergie de la transition nucléaire. Dans les plasmas, ce processus, ainsi que les processus inverses, l'émission spontanée et l'émission induite, sont décrits depuis longtemps en raison de leur intérêt astrophysique. La section efficace d'absorption d'un photon, d'énergie $h\nu$, est donnée par la formule de Breit et Wigner [Ham75] :

$$\sigma_\gamma(h\nu) = \frac{2I_2 + 1}{2(2I_1 + 1)} \frac{\pi \hbar^2 c^2}{(h\nu)^2} \frac{\Gamma_\gamma \Gamma}{[(h\nu - E_N)^2 + \Gamma^2/4]} \quad (1.1)$$

avec Γ_γ la largeur radiative de la transition nucléaire et Γ sa largeur totale, E_N est l'énergie de la transition nucléaire, les termes I_1 et I_2 sont les moments cinétiques

1. constante de structure fine

totaux de l'état initial et final. La largeur totale (Γ) est généralement très faible, très inférieure à l'électron-volt. Par exemple, dans le cas du premier état excité du ^{201}Hg de durée de vie 81 ns, la largeur totale est de l'ordre de 10^{-8} eV. Ainsi, la section efficace peut-être réécrite sous la forme :

$$\sigma_\gamma(h\nu) = \frac{2I_2 + 1}{2I_1 + 1} \frac{\pi^2 \hbar^2 c^2}{(h\nu)^2} \Gamma_\gamma \delta(h\nu - E_N) \quad (1.2)$$

Le nombre de noyaux par unité de volume et par unité de temps, excités par le processus de photo-excitation, noté N_{exc} , s'écrit à partir de la section efficace :

$$\begin{aligned} \frac{dN_{exc}}{dt} &= 4\pi N_{ion} c \int_0^\infty \sigma(\nu) g(\nu) d\nu \\ &= 2N_{ion} \frac{2I_2 + 1}{2I_1 + 1} \frac{\pi^2 \hbar c^3}{E_N^2} \Gamma_\gamma g\left(\frac{E_N}{h}\right) \end{aligned} \quad (1.3)$$

où N_{ion} est le nombre d'ions par cm^3 et $g(\nu)$ est la fonction de distribution des photons. A l'équilibre thermodynamique, la fonction de distribution des photons suit une distribution de Planck qui s'exprime par :

$$g(\nu) = \frac{2\nu^2}{c^3} \frac{1}{\exp\left(\frac{h\nu}{kT}\right) - 1} \quad (1.4)$$

Le taux de photo-excitation s'écrit alors :

$$\lambda_{photo}(s^{-1}) = \frac{2I_2 + 1}{2I_1 + 1} \frac{\Gamma_\gamma}{\hbar} \frac{1}{\exp\left(\frac{E_N}{kT}\right) - 1} \quad (1.5)$$

Le taux d'excitation de ce processus est indépendant de la densité du plasma et ne dépend que de la température et de la largeur radiative. La largeur nucléaire étant très faible, on s'attend à ce que le taux d'excitation par absorption directe d'un photon soit faible.

La diffusion inélastique d'électrons

Lors de la diffusion d'un électron libre du plasma sur le noyau, une partie de l'énergie cinétique de l'électron peut être transférée au noyau et l'exciter. La section efficace de ce processus, notée $\sigma_{(e,e')}$, est bien décrite lorsque l'énergie de l'électron est supérieure à une centaine de keV. Dans les plasmas, la distribution en énergie des électrons est plutôt autour de quelques dizaines de keV. Dans cette gamme d'énergie, les résultats des différents modèles théoriques présentés dans la littérature diffèrent de plusieurs ordres de grandeur [Tka12]. Le taux d'excitation par ce processus s'écrit :

$$\lambda_{(e,e')} = n_e^f \int_{E_0}^\infty P(E) v \sigma_{(e,e')} dE \quad (1.6)$$

où n_e^f [cm^{-3}] est la densité d'électrons libres, E_0 est l'énergie minimale que l'électron doit avoir pour exciter le noyau, $P(E)$ est la probabilité de trouver un électron libre d'énergie E . Dans le cas de l'équilibre thermodynamique cette probabilité est décrite par la statistique de Fermi-Dirac. Enfin v [cm.s^{-1}] est la vitesse de l'électron libre. Notons que les sections efficaces d'excitation par ce processus sont très faibles. Dans le cas du premier état excité du ^{201}Hg , la section efficace est de l'ordre de $5 \times 10^{-31} \text{ cm}^2$ à 10 keV. Dans le cas d'ISOMEX, la méthode théorique utilisée pour déterminer la section efficace est détaillée dans les références [Gos09][Dzy13].

1.1.1.2 Les processus indirects

L'effet NEEC (Nuclear Excitation by Electron Capture)

Le phénomène d'excitation par capture d'un électron libre du plasma est connu dans la littérature sous l'acronyme NEEC qui est l'inverse de la conversion interne. Dans le processus NEEC (figure 1.1), un électron libre est capturé dans une couche atomique et l'excédant d'énergie est transféré au noyau. A ce jour, l'effet NEEC n'a encore jamais été observé expérimentalement.

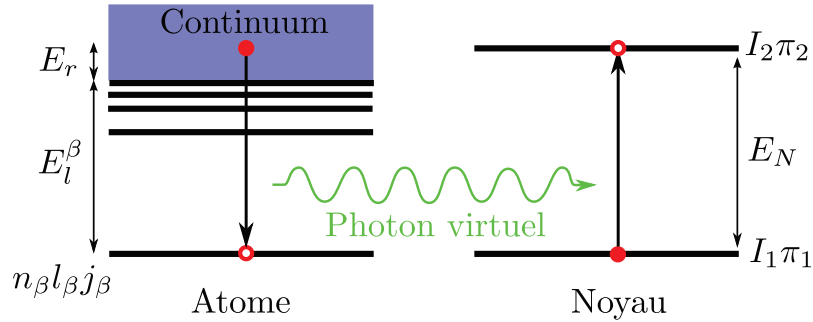


FIGURE 1.1 – Schéma représentant le processus NEEC.

L'excitation peut avoir lieu lorsque l'énergie cinétique E_r de l'électron libre (appelée énergie de résonance) est égale à :

$$E_r = E_N - E_l^\beta \quad (1.7)$$

où E_l^β est l'énergie de liaison de l'électron dans l'orbitale β et E_N l'énergie de la transition nucléaire. Le taux NEEC dans un plasma à une température T est déterminé à partir de la règle d'or de Fermi [Gos04][Gos07]. Il s'exprime par la relation suivante :

$$\lambda^{\text{NEEC}}(s^{-1}) = \sum_{\beta} \frac{2\pi}{\hbar} (2I_2 + 1) |R_{f\beta}|^2 n(E_r) P(E_r, T) [1 - P(E_l^\beta, T)] \quad (1.8)$$

où $n(E_r)$ est la densité d'état électronique par cm^3 et par keV à l'énergie de résonance E_r , $|R_{f\beta}|^2$ est l'élément de matrice de couplage atome noyau, I_2 est le moment cinétique total de l'état nucléaire excité, l'indice β correspond à l'orbitale où la lacune est présente, $P(E_r, T)$ est la probabilité de trouver un électron libre à une énergie E_r dans un plasma à une température T et $1 - P(E_i^\beta, T)$ est la probabilité de trouver une lacune dans l'orbitale β . A l'équilibre thermodynamique, les probabilités de ces deux quantités sont déterminées par la statistique de Fermi-Dirac.

L'effet NEET (Nuclear Excitation by Electron Transition)

L'effet NEET est un processus résonant qui a été initialement proposé par Morita [Mor73] en 1973. Comme le processus NEEC, l'effet NEET est un mécanisme de couplage entre le cortège électronique et le noyau (figure 1.2). Lors d'une désexcitation atomique entre deux états liés, il peut exister une probabilité non nulle que l'énergie de cette désexcitation soit directement transférée au noyau et l'excite. Cet effet ne peut avoir lieu que si la transition atomique est de même énergie que la transition nucléaire (aux largeurs des états près) et de même multipolarité. La différence en énergie entre les transitions atomique et nucléaire, notées respectivement E_{at} et E_{N} , est communément appelée "mismatch". Ce terme sera utilisé dans tout ce manuscrit et sera noté $\delta = E_{\text{at}} - E_{\text{N}}$.

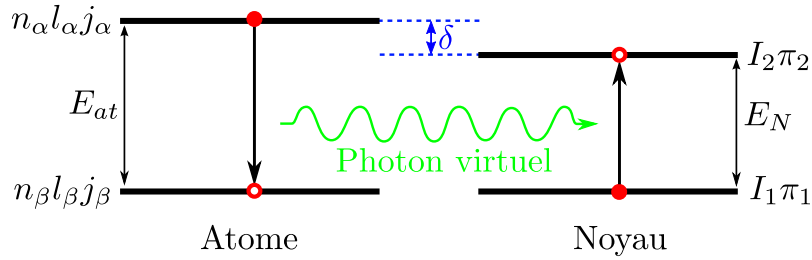


FIGURE 1.2 – Schéma représentant le processus NEET.

L'effet NEET a été observé expérimentalement lors de l'interaction d'un faisceau de particules (photons et électrons) sur une cible solide (cf. Partie 1.3.3) avec des noyaux d' ^{197}Au [Kis06], ^{189}Os [Ahm00] et ^{193}Ir [Kis05].

1.1.2 Tentatives de mise en évidence de l'excitation nucléaire dans un plasma : les cas du ^{181}Ta et du ^{235}U

Les lasers de puissance sont de bons outils pour produire des plasmas denses et chauds. On distingue deux types de lasers dont les caractéristiques dépendent de leur durée d'impulsion :

- lasers à impulsions longues (de l'ordre de la ns), l'énergie de ces lasers est généralement comprise entre le joule et quelques dizaines de kJ. Ils permettent

de produire des plasmas de gros volume avec typiquement un nombre d'atomes présents dans le plasma supérieur à 10^{14} .

- lasers à impulsions courtes (inférieures à la ps), leur énergie est plus faible mais l'intensité sur cible est plus élevée. Ils sont généralement destinés à la production de particules énergétiques (typiquement les électrons et les photons produits peuvent avoir des énergies supérieures au MeV).

Lors d'une interaction laser sur une cible, l'émission de particules (électrons, photons, ions) est importante (de l'ordre de 10^{10} W), induisant un bruit de fond important qui sature les détecteurs. Cependant, la mise en évidence de l'excitation nucléaire dans un plasma nécessite de mesurer la désexcitation de l'état nucléaire. Cette désexcitation doit être décalée en temps c'est-à-dire que la durée de vie de l'état nucléaire doit être bien plus grande que la durée de vie du plasma. Les états nucléaires de longue durée de vie (appelés états isomères) sont bien appropriés pour ces études. En général, un noyau est un bon candidat pour l'observation de l'excitation nucléaire dans les plasmas s'il possède les caractéristiques suivantes :

- Une faible énergie d'excitation qui doit être de l'ordre de la température du plasma.
- L'état fondamental de l'état nucléaire doit être stable ou de grande durée de vie pour qu'une expérience soit réalisable.
- La demi-vie de l'état nucléaire excité doit être grande devant la durée de vie du plasma.
- L'élément de matrice de transition nucléaire doit être grand.

Les deux dernières conditions sont antagonistes car lorsque l'élément de matrice de transition est important, la durée de vie de l'état excité est courte. Les noyaux de ^{181}Ta et de ^{235}U sont deux candidats qui possèdent les bonnes caractéristiques pour la réalisation d'expériences et qui ont fait l'objet d'études dans le passé sans toutefois mener à l'observation d'une excitation nucléaire.

1.1.2.1 Le cas du ^{181}Ta

Le tantale 181, seul isotope stable du tantale, possède un état isomère à 6,2 keV au dessus du fondamental, de demi-vie 6,05 μs . Le ^{181}Ta peut être excité dans un plasma par trois processus : la photo-excitation, la diffusion inélastique d'électrons et le NEEC. L'état isomère se désexcite essentiellement par émission d'un électron de conversion. L'effet NEET ne contribue pas à l'excitation nucléaire car aucune transition atomique n'est résonante avec la transition nucléaire.

A. V. Andreev et al. [And00] annoncent avoir mesuré l'excitation du ^{181}Ta dans un plasma lors de l'interaction d'un laser ps à une intensité de quelques 10^{16} W/cm². Ils affirment avoir mesuré un nombre de noyaux de tantale excités de $2,4 \times 10^4$ par tir laser. Le groupe ENL du CENBG et L2EN du CEA/DAM ont entrepris, auprès

du laser Aurore du CELIA², de refaire cette expérience [Gob06]. Le laser Aurore est un laser haute fréquence (kHz) délivrant des impulsions dont l'intensité peut aller jusqu'à 5×10^{16} W/cm². Ce laser possède les mêmes caractéristiques que celui utilisé dans les travaux de A. V. Andreev et al. [And00]. La mesure directe des particules (γ , électrons) émises lors de la désexcitation de l'état isomérique est difficile car les détecteurs sont généralement saturés par l'émission X provenant du plasma et ce, plusieurs μ s après l'interaction laser. Ainsi, la méthode employée [Gob06] est indirecte. Dans un premier temps, le spectre de photons émis lors de l'interaction laser cible a été caractérisé [Gob06]. A l'aide de simulations Monte-Carlo [Ale07], la distribution en énergie des électrons générant l'émission X a été déterminée. A partir des distributions de photons et d'électrons, le nombre de noyaux excités a été déduit via les sections efficaces de diffusion (e,e') et de photo-excitation. Ainsi, le nombre d'isomères a été estimé à 10^{-3} par tir laser [Gob08] à 5×10^{16} W/cm², valeur très éloignée des mesures d'Andreev et al. [And00]. A ce jour, la mise en évidence de l'excitation du ^{181}Ta dans un plasma reste un problème ouvert.

1.1.2.2 Le cas de l' ^{235}U

L'un des premiers candidats étudiés pour la mise en évidence de l'excitation nucléaire dans les plasmas a été l'uranium 235. Cet isotope de l'uranium est présent à 0,72% sur terre (99,27% pour l'uranium 238). Ce noyau possède un état isomère de très faible énergie située à 76,8 eV au dessus de l'état fondamental et dont la demi-vie est de 26,8 mn. Cet état nucléaire se désexcite par conversion interne. Ces propriétés nucléaires semblent faire de l' ^{235}U un excellent candidat pour ce type d'expérience.

Une étude théorique réalisée par Harston et Chemin [Har99] prédit que l'effet NEET est le processus qui contribue le plus à son excitation. Les transitions atomiques des orbitales $6p$ vers $5d$ sont résonantes avec la transition nucléaire pour des plasmas allant de 20 eV à 100 eV. Le modèle utilisé par Harston et Chemin ne prend en compte qu'un très faible nombre de configurations atomiques du plasma. Suivant la configuration résonante et en tenant compte des incertitudes de la méthode de calcul, le taux NEET (par noyau) est compris entre 10^{-6} et 1 s^{-1} . Le taux NEET calculé par ISOMEX prédit, quant à lui, des taux d'excitation par effet NEET compris entre 10^{-6} à 10^{-5} s^{-1} pour des températures de plasma comprises entre 10 eV et 100 eV, et une densité de 10^{-2} g/cm^3 [Mor04].

De nombreuses expériences ont été réalisées pour tenter de mettre en évidence l'excitation nucléaire de l' ^{235}U dans les plasmas. En 1979, Izawa et al. [Iza79] ont annoncé avoir observé l'excitation de l' ^{235}U dans un plasma d'uranium naturel produit par laser. Ils déterminent un taux d'excitation de 2 s^{-1} . Cependant, de nombreuses autres expériences ont tenté de reproduire ces résultats en se plaçant dans des conditions plus favorables, en enrichissant les cibles en uranium 235 à hauteur de 6% et 99,9 % [Aru91] et n'ont pas confirmé ces résultats. Afin de tenter de clarifier la situation, la collaboration ENL et L2EN a entrepris une expérience au CENBG en

2. Centre Lasers Intenses et Applications

2003 sur un laser Nd :YAG de fréquence 10 Hz, d'énergie 1 Joule répartie sur une durée de 5 ns [Cla04]. L'intensité sur cible était de 10^{13} W/cm². La cible d'uranium était enrichie à 95%. Aucun signal retardé n'a été observé après les tirs sur la cible d'uranium 235. Cependant, une limite supérieure du taux d'excitation a pu en être extraite ($\bar{\lambda}_{NEET} < 6 \times 10^{-6}$ s⁻¹). Cette limite est en accord avec les taux déterminés théoriquement. Parallèlement, une expérience a été réalisée auprès du laser PHEBUS du CEA Limeil-Brévannes. L'énergie du laser de 500 J permettait d'atteindre des intensités de 10^{13} W/cm² pendant 3 ns et de produire en un seul tir des volumes importants de plasma. Une limite supérieure de $2,3 \times 10^{-4}$ s⁻¹ a été obtenue [Mé09]. Cette limite, est elle aussi, en accord avec les taux déterminés théoriquement.

Malgré les caractéristiques nucléaires favorables, aucune mise en évidence expérimentale claire de l'excitation de l'²³⁵U dans un plasma n'a pu être faite. Dans la référence [Mor04], le couplage des calculs de taux NEET avec un code hydrodynamique a permis de montrer que le nombre d'isomères ne doit pas excéder 10^4 à 10^{14} W/cm². La faible valeur des taux d'excitation ($\lambda \sim 10^{-6}$ s⁻¹) rend la mise en évidence de l'excitation du ²³⁵U dans un plasma très difficile. Harston et Chemin [Har99], durant leur étude théorique de l'excitation du ²³⁵U dans un plasma, mentionnent le ²⁰¹Hg comme l'un des candidats potentiels pour la mise en évidence de l'excitation nucléaire dans un plasma.

1.2 Le cas du Mercure 201

Le ²⁰¹Hg, candidat potentiel pour la mise en évidence de l'excitation nucléaire dans les plasmas, a été proposé initialement par Tkalya en 1991 [Tka91]. Notons qu'en 1997, A. Andreev et al. [And97] ont étudié la possibilité d'exciter le mercure 201 à partir d'un laser à impulsion courte sans toutefois signer de manière ferme l'excitation de ce noyau dans les plasmas produits.

1.2.1 Présentation du noyau

Le ²⁰¹Hg, de numéro atomique 80, est un isotope stable (d'abondance 13.8 %) qui possède un premier état excité de faible énergie (pour un état nucléaire) situé à $1564,8 \pm 1$ eV au dessus de l'état fondamental, de durée de vie 81 ns [Mé07] et de spin et parité 1/2- (figure 1.3). Cet état se désexcite vers l'état fondamental, de spin et parité 3/2-, par une transition électromagnétique de multipolarité M1+E2. Dans la suite de ce manuscrit, cet état isomère sera noté ^{201m}Hg (*m* pour métastable).

L'isomère du ²⁰¹Hg se désexcite par deux processus : l'émission radiative et la conversion interne (noté CI). Ce dernier est un processus de couplage entre le noyau et son cortège électronique. Lors de la désexcitation d'un état nucléaire, il existe une probabilité que l'énergie libérée durant cette désexcitation soit directement transférée à un électron du cortège électronique qui est alors émis dans le continuum. On définit le coefficient de conversion interne, noté α_e , comme le rapport entre le taux

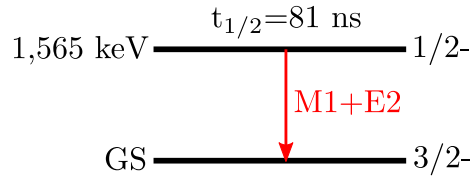


FIGURE 1.3 – Schéma représentant le niveau fondamental et l'état isomérique du ^{201}Hg .

de conversion interne λ_{CI} et le taux de désexcitation radiatif λ_γ :

$$\alpha_e = \frac{\lambda_{CI}}{\lambda_\gamma} \quad (1.9)$$

Le coefficient de conversion interne dépend de l'énergie et de la multipolarité de la transition nucléaire mais aussi du recouvrement des fonctions d'onde électroniques de l'électron libre et de l'électron lié au voisinage du noyau. Ce processus a été très étudié en physique nucléaire et est actuellement bien compris.

Dans le cas du ^{201m}Hg , le coefficient de conversion a été calculé par Band et Trzhaskovskaya et vaut $6,5 \times 10^4$ [Ban91]. La désexcitation de l'état isomère se réalise ainsi préférentiellement par conversion interne. Les orbitales atomiques impliquées dans ce processus sont les orbitales $4s_{1/2}$, $4p_{1/2}$, $4p_{3/2}$ et $5s_{1/2}$, $5p_{1/2}$, $5p_{3/2}$ dont leurs énergies de liaison sont respectivement 803, 681, 577, 120, 84 et 65 eV [Ger97, Dra87]. Les électrons émis lors de la conversion sur les orbitales $4s_{1/2}$, $4p_{1/2}$ et $4p_{3/2}$ ont des énergies cinétiques de 762, 884 et 988 eV respectivement. Le tableau 1.1 présente la comparaison des intensités relatives expérimentales et théoriques des électrons de conversion émis lors de la désexcitation du ^{201m}Hg . L'accord entre la théorie et l'expérience illustre bien la qualité des descriptions théoriques de ce processus.

Rapport $\alpha_{CI}^i/\alpha_{CI}^j$	Expérimental [Ger97]	Théorique [Ban91]
$4s_{1/2}/4p_{1/2}$	$0,94 \pm 0,31$	0,74
$4p_{1/2}/4p_{3/2}$	$0,64 \pm 0,05$	0,76
$4s_{1/2}/4p_{3/2}$	$0,6 \pm 0,2$	0,57
$5s_{1/2}/4p_{1/2}$	$0,13 \pm 0,03$	0,14
$5p_{1/2}/4p_{3/2}$	$0,16 \pm 0,03$	0,13
$5p_{3/2}/4p_{3/2}$	$0,2 \pm 0,04$	0,17

TABLEAU 1.1 – Intensités relatives des coefficients de conversion interne issus de la désexcitation du premier état excité du ^{201}Hg .

1.2.2 Calcul des taux d'excitation avec le code ISOMEX

Les premiers calculs du taux d'excitation du ^{201m}Hg dans les plasmas réalisés avec le code ISOMEX ont été publiés dans les références [Mé07][Gos07]. Les propriétés des

atomes du plasma sont déterminées à partir du modèle de l'atome moyen relativiste [Roz72] à l'équilibre thermodynamique. La figure 1.4 présente pour le ^{201m}Hg les taux d'excitation des quatre processus cités précédemment calculés par ISOMEX, en fonction de la température, pour un plasma de 10^{-2} g/cm^3 . Le choix de cette densité, qui sera explicité plus tard, correspond à la densité où un laser de longueur d'onde $\lambda = 1 \text{ }\mu\text{m}$ dépose la plus grande partie de son énergie. Ces résultats montrent que l'excitation nucléaire par effet NEET est le processus dominant avec deux maxima pour des taux situés respectivement autour des températures de 300 eV et 650 eV.

Le taux NEEC est de deux ordres de grandeur plus faible que le taux NEET. Ceci est généralement le cas en présence d'une transition atomique entre états liés résonante avec la transition nucléaire. En effet, l'élément de matrice de couplage atome noyau dépend du recouvrement des fonctions d'onde électroniques au voisinage du noyau. Ce recouvrement est plus important entre deux états liés qu'entre un état libre et un état lié.

La photoexcitation devient importante à très haute température lorsque le fort flux de photons permet de compenser la faible largeur des états nucléaires ($\Gamma_\gamma \leq 10^{-13} \text{ eV}$ pour le ^{201}Hg).

Enfin, les sections efficaces du processus (e,e') étant très faibles ($\sigma_{(e,e')} < 10^{-30} \text{ cm}^2$), l'excitation nucléaire par ce mécanisme est négligeable dans ce cas malgré la forte quantité d'électrons présents dans le plasma.

Ainsi, l'effet NEET est le processus qui va nous intéresser dans toute la suite de ce manuscrit notamment dans la région de plus faible température où le taux NEET comporte un maximum. Comme nous le verrons dans le prochain chapitre, cette région d'intérêt, dont la température est comprise entre 150 et 400 eV, correspond à des états de charge moyens des ions du plasma compris entre 40^+ et 50^+ . Ces états de charge peuvent être aisément atteints dans les plasmas produits par laser (cf. Chapitre 3). Les états de charge où l'effet NEET est maximum sont appelés états de charge résonants.

Nous reviendrons en détail dans le deuxième chapitre sur la méthode utilisée pour calculer le taux NEET dans le modèle de l'atome-moyen relativiste. Nous verrons que le calcul du taux NEET dans ce modèle est réalisé en décrivant le grand nombre de transitions atomiques présentes dans le plasma par une approche statistique. Dans le cas de la description d'un processus résonant comme l'effet NEET et au vu des largeurs nucléaires mises en jeu, on peut s'interroger sur la validité de cette approche. Un des objectifs de mon travail de thèse a consisté à quantifier un intervalle de confiance pour ces calculs de taux NEET.

1.3 Détails sur l'effet NEET

Nous avons vu précédemment que dans un plasma d'une température de quelques centaines d'eV et de densité 10^{-2} g/cm^3 , l'effet NEET est le processus qui contribue majoritairement à l'excitation du ^{201m}Hg dans les plasmas à l'équilibre thermodyna-

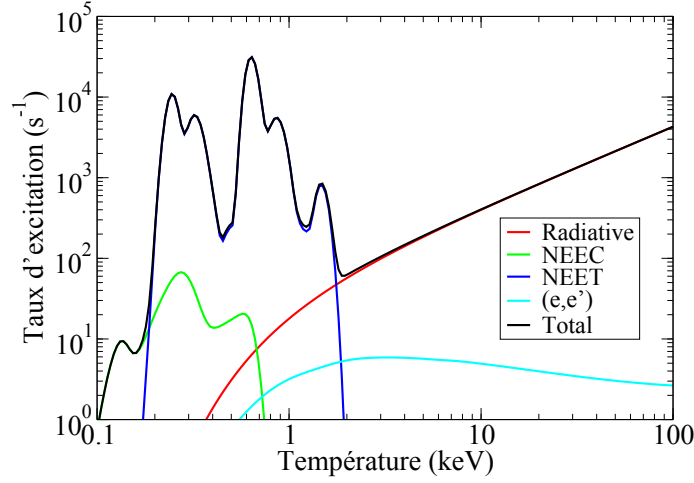


FIGURE 1.4 – Taux d'excitation du premier état isomère du ^{201}Hg en fonction de la température du plasma calculés par le code ISOMEX à l'équilibre thermodynamique à 10^{-2} g/cm^3 .

mique (figure 1.4). Dans cette partie, nous allons décrire plus en détail ce processus.

1.3.1 Physique atomique pour l'effet NEET

Le taux d'un processus de couplage atome noyau (CI, NEEC, NEET, ...) est d'autant plus important que la probabilité de trouver un électron au voisinage du noyau est grande. Comme nous le verrons dans la partie suivante, l'élément de matrice de couplage dépend de la fonction de Hankel du premier type et d'ordre L , noté h_L , qui, pour les faibles distances électrons-noyau, a le comportement [Ham75] :

$$h_L(kr) \approx \frac{(2L-1)!!}{(kr)^{L+1}} \quad (1.10)$$

où k est le vecteur d'onde et L la multipolarité de la transition. La forte dépendance en $1/r^{L+1}$ de l'élément de matrice de couplage nécessite de prendre en compte les effets relativistes afin de bien décrire les fonctions d'onde au voisinage du noyau. Pour cela, la résolution de l'équation de Dirac est nécessaire.

Physique atomique relativiste

En présence d'un champ central [Gra07], noté $V(r)$, l'équation de Dirac monoélectronique s'écrit sous la forme :

$$\left(\beta m_e c^2 + c \vec{\alpha} \cdot \vec{p} + V(r) \right) \psi(r) = E \psi(r) \quad (1.11)$$

où $\psi(r)$ est la fonction d'onde de l'électron, m_e sa masse, \vec{p} désigne l'opérateur impulsion et E est l'énergie totale de l'électron. Les termes $\vec{\alpha}$ et β , appelés matrices

de Dirac, sont des matrices 4x4 liées respectivement à l'énergie cinétique de la particule et à son énergie de masse. La fonction d'onde finale, solution de l'équation de Dirac dans un potentiel central $V(r)$, se ré-exprime en séparant la partie radiale et la partie angulaire :

$$\psi(r) = \frac{1}{r} \begin{pmatrix} P_{n\kappa}(r)\chi_{\kappa m}(\theta, \phi) \\ iQ_{n\kappa}(r)\chi_{-\kappa m}(\theta, \phi) \end{pmatrix} \quad (1.12)$$

où les fonctions d'onde radiales $P_{n\kappa}(r)$ et $Q_{n\kappa}(r)$ sont appelées respectivement grande et petite composante. Les termes $\chi_{\pm\kappa m}(\theta, \phi)$ traduisent la dépendance angulaire de la fonction d'onde où n est le nombre quantique principal et κ est le nombre quantique relativiste relié au moment cinétique orbital l et au moment cinétique total $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$ (\vec{s} est le spin de l'électron) par :

$$\begin{aligned} j &= |\kappa| - \frac{1}{2} \\ l(l+1) &= \kappa(\kappa+1) \end{aligned} \quad (1.13)$$

Les orbitales électroniques, qualifiées de relativistes, peuvent être caractérisées par les nombres quantiques nlj . On parlera dans la suite d'orbitales non-relativistes lorsqu'elles découleront de la résolution de l'équation de Schrödinger. Ces dernières seront alors caractérisées par les nombres quantiques nl en l'absence de terme perturbatif dans l'hamiltonien pour décrire le couplage spin-orbite.

Configuration électronique relativiste

La répartition des électrons sur les orbitales électroniques est appelée dans la suite de ce manuscrit une configuration électronique. Dans le cas d'une configuration relativiste, la configuration électronique est alors notée :

$$C = (n_1 l_1 j_1)^{N_1} (n_2 l_2 j_2)^{N_2} (n_3 l_3 j_3)^{N_3} \dots \quad (1.14)$$

où N_i est le nombre d'électrons dans l'orbitale $n_i l_i j_i$ qui peut en contenir au maximum $2j_i + 1$. La dégénérescence de cette orbitale est donnée par :

$$g_{(j_i)^{N_i}} = C_{2j_i+1}^{N_i} = \frac{(2j_i+1)!}{(2j_i+1-N_i)!N_i!} \quad (1.15)$$

La dégénérescence totale de la configuration C , noté g_C , est donnée par le produit des dégénérescences de ses orbitales :

$$g_C = \prod_{k=1}^{k_{\max}} C_{2j_k+1}^{N_k} \quad (1.16)$$

où k_{\max} est le nombre total d'orbitales de l'atome.

Transition atomique et règles de sélection

Une transition monoélectronique implique le passage d'un seul électron d'une orbitale α de la configuration initiale C_i (1.17) vers l'orbitale β d'une configuration finale C_f (1.18) :

$$C_i = (n_1 l_1 j_1)^{N_1} (n_2 l_2 j_2)^{N_2} \dots (n_\beta l_\beta j_\beta)^{N_\beta} \dots (n_\alpha l_\alpha j_\alpha)^{N_\alpha} \dots \quad (1.17)$$

$$C_f = (n_1 l_1 j_1)^{N_1} (n_2 l_2 j_2)^{N_2} \dots (n_\beta l_\beta j_\beta)^{N_\beta+1} \dots (n_\alpha l_\alpha j_\alpha)^{N_\alpha-1} \dots \quad (1.18)$$

Les règles de sélection définissent la multipolarité de la transition, notée L et son type, électrique ou magnétique. Pour une transition de l'orbitale α vers l'orbitale β , la conservation du moment cinétique et de la parité impose :

$$\pi = \pi_\alpha \pi_\beta \begin{cases} = (-1)^{L+1} & \text{pour une transition magnétique} \\ = (-1)^L & \text{pour une transition électrique} \end{cases} \quad (1.19)$$

$$|j_\alpha - j_\beta| \leq L \leq |j_\alpha + j_\beta|$$

où π est la parité du photon et L son moment cinétique. La parité de l'orbitale π_i est déterminée à l'aide de son moment cinétique orbital l_i et vaut $(-1)^{l_i}$. Par exemple, pour une transition $3d_{3/2} \rightarrow 1s_{1/2}$, nous avons $\pi = (-1)^2(-1)^0 = 1$ et $1 \leq L \leq 2$. Les conditions précédentes sont vérifiées pour des transitions M1 et E2.

1.3.2 Expression théorique de la probabilité NEET

1.3.2.1 Probabilité NEET et élément de matrice de couplage atome noyau

Dans le processus NEET, on définit la probabilité d'occurrence de l'effet NEET, P_{NEET} , comme la probabilité qu'une désexcitation atomique engendre une excitation nucléaire. La formule générale de l'effet NEET a été déterminée par Tkalya [Tka92] et corrigée ensuite par Harston [Har01]. L'expression de cette probabilité, pour une transition atomique de l'orbitale α vers l'orbitale β , s'écrit

$$P_{\text{NEET}} = \left(1 + \frac{\Gamma_f}{\Gamma_i}\right) \frac{|W_{\alpha\beta}|^2}{\delta^2 + \left(\frac{\Gamma_i + \Gamma_f}{2}\right)^2} \quad (1.20)$$

où $|W_{\alpha\beta}|^2$ est l'élément de matrice de couplage atome noyau, le terme δ est le mismatch en énergie entre la transition atomique et la transition nucléaire, enfin Γ_i et Γ_f sont les largeurs respectives de l'état initial et final. Ces largeurs s'expriment à partir de la somme des largeurs atomiques et nucléaires :

$$\begin{aligned} \Gamma_i &= \Gamma_N^1 + \Gamma_{\text{at}}^\alpha \\ \Gamma_f &= \Gamma_N^2 + \Gamma_{\text{at}}^\beta \end{aligned} \quad (1.21)$$

où Γ_N^1 et Γ_N^2 sont les largeurs des états nucléaires initial et final. Généralement les largeurs atomiques Γ_{at} sont plus importantes que les largeurs nucléaires Γ_{nuc} ($\Gamma_{\text{at}} \geq$

meV, $\Gamma_N \leq 10^{-8}$ eV). Ainsi, dans tout ce manuscrit, nous ne prendrons en compte que les largeurs des orbitales atomiques :

$$\begin{aligned}\Gamma_i &\approx \Gamma_{\text{at}}^\alpha \\ \Gamma_f &\approx \Gamma_{\text{at}}^\beta\end{aligned}\tag{1.22}$$

Dans la référence [Mor04], D. Gogny a utilisé le formalisme basé sur la théorie formelle des réactions développée par Goldberger [Gol04] pour décrire la dynamique du processus NEET. A partir de ce formalisme, la probabilité NEET en fonction du temps a pu être extraite. Il a été ainsi montré que cette probabilité atteint sa valeur asymptotique, identique à la relation (1.20), au bout d'un temps τ_∞ qui dépend de la valeur des largeurs des états Γ_α et Γ_β :

$$\tau_\infty = \frac{\hbar}{2} \left(\frac{1}{\Gamma_\alpha} + \frac{1}{\Gamma_\beta} \right)\tag{1.23}$$

Dans la suite de ce travail, nous ne considérerons que la probabilité NEET asymptotique. En effet, nous verrons dans la suite que dans un plasma à 10^{-2} g/cm³, les largeurs atomiques sont de l'ordre de quelques meV. Ainsi la probabilité NEET est atteinte pour des temps inférieurs à 10^{-13} s. Dans le cas d'une interaction laser en régime nanoseconde, la physique atomique et les conditions thermodynamiques sont stationnaires pendant la dizaine de picosecondes [Mor04]. La probabilité NEET a ainsi le temps d'atteindre sa valeur asymptotique.

Dans le processus NEET, l'élément de matrice de couplage est très proche de celui de la conversion interne qui est bien connu [Ham75]. L'élément de matrice de couplage atome noyau intervenant dans la probabilité NEET s'exprime sous la forme [Mor04] :

$$\begin{aligned}|W_{\alpha\beta}|^2 &= 4\pi e^2 k_N^{2L+2} \left\langle j_\alpha L \frac{1}{2} 0 \left| j_\beta \frac{1}{2} 0 \right. \right\rangle^2 \times \frac{1}{[L(2L+1)!!]^2} \\ &\quad |R_{n_\alpha \kappa_\alpha n_\beta \kappa_\beta}(E/M \ L)|^2 B_{I_1 \rightarrow I_2}(E/M \ L)\end{aligned}\tag{1.24}$$

où la transition atomique est réalisée entre une orbitale initiale et une orbitale finale caractérisées respectivement par les nombres quantiques $n_\alpha l_\alpha j_\alpha$ et $n_\beta l_\beta j_\beta$. L'état nucléaire initial (état fondamental) et l'état final (état excité) sont caractérisés respectivement par leur moment cinétique total et leur parité, $I_1 \pi_1$ et $I_2 \pi_2$ (figure 1.2). Le terme $k_N = E_N/\hbar c$ est le vecteur d'onde de la transition nucléaire d'énergie E_N , $|R_{n_\alpha \kappa_\alpha n_\beta \kappa_\beta}(E/M \ L)|^2$ est l'élément de matrice électronique radial et $B_{I_1 \rightarrow I_2}(E/M \ L)$ l'élément de matrice réduit de la transition nucléaire. Ces deux éléments de matrice dépendent de la nature des transitions (E pour électrique et M pour magnétique) et de sa multipolarité L . Dans l'expression de l'élément de matrice de couplage atome noyau, la séparation de la partie atomique et nucléaire suppose que la variation de l'élément de matrice électronique est négligeable dans le noyau compte tenu de sa faible dimension. C'est l'approximation du noyau ponctuel [Ham75].

1.3.2.2 Éléments de matrice radial électronique

L'élément de matrice radial électronique dépend du type et de la multipolarité L de la transition. Dans le cas d'une transition électrique l'élément de matrice électronique s'écrit :

$$\begin{aligned} R_{n_\alpha \kappa_\alpha n_\beta \kappa_\beta}(EL) = & \int_0^\infty \left(L[P_\alpha(r)P_\beta(r) + Q_\alpha(r)Q_\beta(r)]h_L(k_N r) \right. \\ & + [(\kappa_\alpha - \kappa_\beta - L)P_\alpha(r)Q_\beta(r) \\ & \left. + (\kappa_\alpha - \kappa_\beta + L)Q_\alpha(r)P_\beta(r)]h_{L-1}(k_N r) \right) dr \end{aligned} \quad (1.25)$$

Pour une transition magnétique, l'élément de matrice devient :

$$R_{n_\alpha \kappa_\alpha n_\beta \kappa_\beta}(ML) = (\kappa_\alpha + \kappa_\beta) \int_0^\infty \left([P_\beta(r)Q_\alpha(r) + P_\alpha(r)Q_\beta(r)]h_L(k_N r) \right) dr \quad (1.26)$$

avec $P_\alpha(r)$, $Q_\alpha(r)$, $P_\beta(r)$ et $Q_\beta(r)$ respectivement les grandes et petites composantes des fonctions d'onde de l'orbitale initiale et finale. Enfin, le terme h_L désigne la fonction de Hankel du premier type d'ordre L .

1.3.2.3 Éléments de matrice réduit de la transition nucléaire

En physique nucléaire, les éléments de matrice réduits de transition $B(E/M L)$ sont généralement exprimés en unité Weisskopf (W.u), c'est-à-dire en réalisant le rapport avec l'évaluation théorique de Weisskopf, notée $B_W(E/M L)$, calculée dans un modèle à particules indépendantes [Boh98] :

$$B(E/M L) = \gamma B_W(E/M L) \quad (1.27)$$

où γ est une quantité exprimée en unité Weisskopf (W.u). Le terme $B_W(E/M L)$ s'écrit, pour une transition électrique et magnétique comme [Boh98] :

$$\begin{aligned} B_W(EL) &= \frac{e^2}{4\pi} \left(\frac{3}{3+L} \right)^2 R^{2L} \\ B_W(ML) &= \frac{10e^2}{4\pi} \left(\frac{\hbar}{m_p c} \right)^2 \left(\frac{3}{3+L} \right)^2 R^{2L-2} \end{aligned} \quad (1.28)$$

où e est la charge élémentaire, le terme R est le rayon nucléaire et s'exprime généralement par $R = r_0 A^{1/3}$ où $r_0 = 1,2$ fm et A le nombre de masse du noyau. Enfin, m_p est la masse du proton.

Le terme $B_W(E/M L)$ ne dépend pas directement du moment cinétique des états nucléaires impliqués dans la transition mais seulement de la multipolarité de la transition. Cela permet d'appréhender le caractère collectif d'une transition nucléaire par

rapport à une transition n'impliquant qu'un seul nucléon. L'élément de matrice réduit $B(E/M L)$ doit dépendre du sens de la transition (excitation ou désexcitation) mais aussi de son type et de sa multipolarité. Les éléments de matrice réduits pour l'excitation ou la désexcitation, respectivement, $B_{I_1 \rightarrow I_2}(E/M L)$ et $B_{I_2 \rightarrow I_1}(E/M L)$, sont reliés par [Mor04] :

$$B_{I_1 \rightarrow I_2}(E/M L) = \frac{2I_2 + 1}{2I_1 + 1} B_{I_2 \rightarrow I_1}(E/M L) \quad (1.29)$$

où $I_1(I_2)$ est le moment cinétique total de l'état fondamental (de l'état excité). Expérimentalement, les éléments de matrice réduits peuvent être déterminés à partir de la mesure de la demi-vie de l'état nucléaire et du coefficient de conversion interne. La démarche pour extraire l'élément de matrice nucléaire réduit à partir de ces deux quantités est expliquée dans l'annexe A. Dans le cas de la désexcitation du ^{201m}Hg , les éléments de matrice réduits, M1 et E2, de la transition du niveau à 1,565 keV vers le niveau fondamental (figure 1.3), $B_{I_2 \rightarrow I_1}(M1)$ et $B_{I_2 \rightarrow I_1}(E2)$, valent [Mé07] :

$$\begin{aligned} B_{I_2 \rightarrow I_1}(M1) &= 1,1 \times 10^{-3} \text{ W.u} \\ B_{I_2 \rightarrow I_1}(E2) &= 35,5 \text{ W.u} \end{aligned} \quad (1.30)$$

1.3.3 Observation de l'effet NEET en cible solide

L'effet NEET a été observé expérimentalement lors de l'interaction d'un faisceau de particules avec une cible solide sur l' ^{197}Au [Kis06], ^{189}Os [Ahm00] et ^{193}Ir [Kis05]. Ces trois éléments possèdent une transition atomique vers la couche K qui résonne avec la transition nucléaire. Le tableau 1.2 présente les caractéristiques des transitions nucléaires pour ces trois éléments ainsi que la transition atomique résonnante correspondante. Les niveaux nucléaires ont des temps de vie de quelques ns. Le faisceau de particules (photons produits par rayonnement synchrotron par exemple) permet de réaliser des lacunes en couche K . L'état atomique se désexcite essentiellement par des transitions radiatives E1. Cependant, une petite proportion de ces transitions va réaliser l'effet NEET. L'excitation est signée via une mesure de la période de l'isomère.

Noyau	$I_1\pi_1 \rightarrow I_2\pi_2$	$(E/M L)E_N$ (keV)	Trans. atom.	E_{at} (keV)	δ (keV)
$^{197}_{79}\text{Au}$	$\frac{3}{2}+ \rightarrow \frac{1}{2}+$	(M1+E2)77,345	$3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}$	77,272	-0,073
$^{189}_{76}\text{Os}$	$\frac{3}{2}- \rightarrow \frac{5}{2}-$	(M1+E2)69,535	$3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}$	70,795	1,26
$^{193}_{77}\text{Ir}$	$\frac{3}{2}+ \rightarrow \frac{1}{2}+$	(M1+E2)73,044	$3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}$	72,911	-0,133

TABLEAU 1.2 – Caractéristiques des transitions nucléaires des noyaux utilisés pour la mise en évidence expérimentale de l'effet NEET.

Pour calculer la probabilité de l'effet NEET dans les noyaux cités dans le tableau 1.2, nous devons calculer la valeur de l'élément de matrice de couplage atome noyau.

Pour cela, nous avons utilisé le code MCDF (Multi-Configuration Dirac Fock) de J.Bruneau [Bru84] dans une version où le couplage des moments cinétiques des électrons est inhibé (plus de détails sont fournis sur le code MCDF dans le Chapitre 2). Les configurations électroniques initiale et finale sont solutions de l'équation de Dirac-Fock. On obtient ainsi l'énergie de chaque configuration et les fonctions d'onde des orbitales atomiques. L'énergie de la transition atomique est alors définie comme la différence en énergie entre les configurations initiale et finale. Les énergies des transitions atomiques ainsi que la valeur de leur mismatch sont listées dans le tableau 1.2. Le tableau 1.3 présente la comparaison des résultats calculés de la probabilité NEET avec les mesures expérimentales. Les largeurs des états initial et final sont principalement déterminées à partir du temps de désexcitation radiatif total qui est de l'ordre de 10^{-17} s pour les transitions E1 vers la couche K . Les éléments de matrice nucléaire réduits de l'excitation $B_{I_1 \rightarrow I_2}(M1)$ sont déterminés à partir de celui de la désexcitation $B_{I_2 \rightarrow I_1}(M1)$ disponible dans la base de donnée du *National Nuclear Data Center*³.

Noyau	Γ_i (eV)	Γ_f (eV)	$B_{I_1 \rightarrow I_2}(M1)$ (W.u)	$ W_{\alpha\beta} ^2$ (eV ²)	P_{NEET}	
					Théorique	Expérimentale
¹⁹⁷ ₇₉ Au	51	21	$2,05 \times 10^{-4}$	$1,02 \times 10^{-4}$	$2,2 \times 10^{-8}$	$(5,0 \pm 0,6) \times 10^{-8}$
¹⁸⁹ ₇₆ Os	44	20	$1,28 \times 10^{-3}$	$1,33 \times 10^{-4}$	$1,2 \times 10^{-10}$	$< 9 \times 10^{-10}$
¹⁹³ ₇₇ Ir	50	20	$4,9 \times 10^{-4}$	$1,91 \times 10^{-5}$	$1,4 \times 10^{-9}$	$(2,8 \pm 0,4) \times 10^{-9}$

TABLEAU 1.3 – Comparaison des valeurs des probabilités NEET P_{NEET} expérimentales et théoriques des noyaux ¹⁹⁷Au [Kis06], ¹⁸⁹Os [Ahm00], ¹⁹³Ir [Kis05].

Les résultats théoriques de la probabilité NEET sont du même ordre de grandeur que les valeurs expérimentales pour l'¹⁹⁷Au et ¹⁹³Ir et les valeurs calculées par Harston [Har01]. Dans le cas de la mesure sur l'¹⁸⁹Os, la probabilité NEET calculée est faible car le mismatch entre la transition atomique et nucléaire est élevé ($\delta = 1,26$ keV). L'expérience n'a ainsi pu fournir qu'une limite supérieure de la probabilité NEET.

1.3.3.1 L'excitation du ^{201m}Hg dans une cible solide

Nous pouvons maintenant évaluer la probabilité de réaliser l'effet NEET pour le ^{201m}Hg dans une expérience d'interaction entre un faisceau de particules et une cible solide de ²⁰¹Hg. Dans la référence [Sak05], Sakabe et al. prédisent que la transition atomique $4s_{1/2} \rightarrow 3d_{3/2}$ résonne avec la transition nucléaire avec un mismatch de 24 eV. En utilisant MCDF, nous avons calculé pour cette transition, l'élément de matrice de couplage et le mismatch lorsque l'atome possède un état de charge de 1^+ . Nous obtenons une énergie de transition de 1,571 keV soit un mismatch de 6 eV, soit une différence de 18 eV avec le calcul de Sakabe [Sak05].

3. voir www.nndc.bnl.gov/ensdf/

Il faut noter que la transition atomique est une transition M1 et E2 comme la transition nucléaire (cf. figure 1.3). Le tableau 1.4 présente la valeur de l'élément de matrice de couplage et la probabilité NEET pour les transitions atomiques de type M1 et E2. Les largeurs des états sont la somme des largeurs radiatives et Auger [Ohn03, Cra84].

Noyau	Γ_i (eV)	Γ_f (eV)	$B_{I_1 \rightarrow I_2}(E/M L)$ (W.u)	δ (eV)	$ W_{\alpha\beta} ^2$ (eV ²)	P_{NEET} Théorique
$^{201}_{80}\text{Hg}$	3	10	(M1) $5,5 \times 10^{-4}$ (E2)17,8	6	$1,4 \times 10^{-15}$ $8,3 \times 10^{-10}$	8×10^{-17} $4,9 \times 10^{-11}$

TABLEAU 1.4 – Probabilité NEET calculée dans le cas d'une excitation du ^{201m}Hg dans un ion isolé.

Dans le cas du ^{201}Hg , la probabilité de réaliser l'effet NEET est très faible en comparaison des noyaux d' ^{197}Au , d' ^{189}Os et d' ^{193}Ir . La raison principale est que, dans le cas du ^{201}Hg , la transition atomique résonante est une transition entre deux orbitales périphériques. La figure 1.5 présente la comparaison de la densité de probabilité de présence de l'électron des transitions atomiques résonantes du ^{201}Hg ($4s_{1/2} \rightarrow 3d_{3/2}$) et de l' ^{197}Au ($3s_{1/2} \rightarrow 1s_{1/2}$). Le recouvrement des fonctions d'onde $3s_{1/2}$ et $1s_{1/2}$ de l'or est plus fort au voisinage du noyau (rayon $\sim 10^{-4} a_0$ où $a_0 = 0,5 \text{ \AA}$ est le rayon de Bohr) que les fonctions d'onde $4s_{1/2}$ et $3d_{3/2}$ du mercure. L'élément de matrice de couplage est ainsi plus important pour l' ^{197}Au ($1,02 \times 10^{-4} \text{ eV}^2$) que pour le ^{201}Hg ($8,3 \times 10^{-10} \text{ eV}^2$ pour la composante E2).

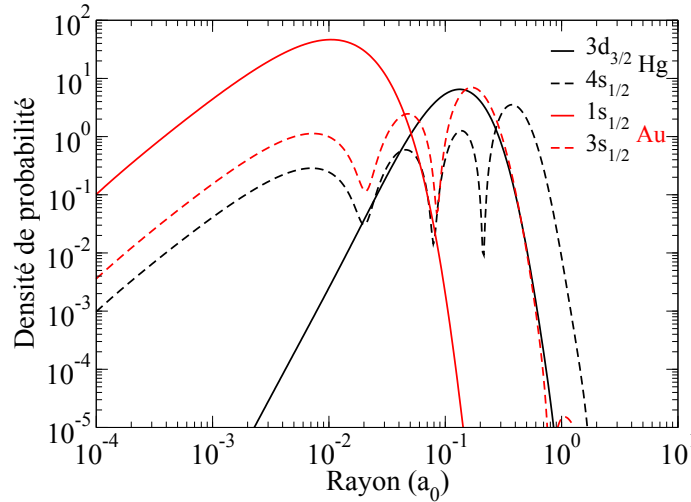


FIGURE 1.5 – Densité de probabilité de présence de l'électron dans les orbitales des transitions atomiques résonantes dans le cas de l'excitation du ^{201}Hg et de l' ^{197}Au en cible solide.

En résumé, la valeur de l'élément de matrice de couplage atome-noyau est très

faible dans le cas du ^{201}Hg rendant la probabilité de réaliser l'effet NEET très peu probable dans une expérience où un faisceau de particules interagit avec une cible à l'état liquide (mercure métallique) ou solide (alliage de HgTe). La mesure de l'excitation nucléaire par ce processus nécessite que de nombreux atomes soient placés dans des configurations électroniques qui permettent d'obtenir une résonance avec la transition nucléaire. Un plasma peut ainsi être un environnement favorable pour l'excitation par ce processus. Un des objectifs de cette thèse est de montrer que le très grand nombre de transitions atomiques présentes dans un plasma permet d'atteindre beaucoup plus facilement la résonance.

1.3.4 L'effet NEET dans les plasmas

L'état plasma, quatrième état de la matière, est le plus abondant dans l'Univers. Lorsque la matière est à l'état de plasma, elle est composée :

- d'électrons libres,
- d'ions de charge électrique $+Qe$ où Q définit l'état de charge de l'ion. Ils possèdent alors $N = Z - Q$ électrons liés où Z est le numéro atomique de l'ion,
- de photons, d'énergie $h\nu$ qui constituent le rayonnement émis par le plasma.

Dans le chapitre 2, les calculs de taux NEET seront réalisés à l'équilibre thermodynamique (noté ET). Un plasma atteint l'équilibre thermodynamique après un certain temps si le libre parcours moyen des particules le constituant est inférieur à sa dimension. On peut ainsi définir la température du plasma, notée T . Elle est proportionnelle à la moyenne des énergies cinétiques des particules et s'exprime généralement en degré Kelvin. En physique des plasmas, la température est plutôt exprimée en eV. Ces deux quantités sont reliées par la constante de Boltzmann k_B :

$$k_B = \frac{1}{11\,605} \text{ eV/K} \quad (1.31)$$

Dans cet équilibre, les ions et les électrons suivent une distribution de Maxwell-Boltzmann. Les photons suivent une distribution de Planck.

Un plasma est aussi caractérisé par sa densité définie par trois quantités :

- la densité massique, notée ρ [g.cm^{-3}], définit la masse de matière pour un volume donné de plasma,
- le nombre d'ions ou d'électrons dans un volume donné de plasma, noté respectivement n_i et n_e [cm^{-3}]

On définit alors l'état de charge moyen du plasma ou ionisation moyenne, noté \overline{Q} . Les trois types de densités ρ , n_i et n_e sont ainsi reliés par :

$$\begin{aligned} n_i &= \frac{\mathcal{N}_A}{M_A} \rho \\ n_e &= \bar{Q} n_i \end{aligned} \quad (1.32)$$

avec le nombre d'Avogadro \mathcal{N}_A et M_A la masse molaire de l'élément.

Pour chaque état de charge constituant le plasma, les électrons liés ne sont pas obligatoirement dans la configuration électronique de plus basse énergie (généralement appelée configuration fondamentale) mais peuvent occuper des orbitales plus élevées. Pour chaque configuration électronique autorisant une transition $\alpha \rightarrow \beta$ donnée, l'énergie de la transition atomique dépend de la répartition des électrons sur les orbitales atomiques. Une transition atomique qui n'est pas résonante avec la transition nucléaire dans un atome ayant une seule lacune, peut l'être pour un état de charge donné et pour certaines configurations électroniques. De plus, certains processus atomiques, tels que les collisions entre les électrons liés et les électrons libres du plasma augmentent la largeur des orbitales atomiques. La probabilité d'obtenir une transition atomique résonante avec la transition nucléaire peut ainsi être plus importante dans un plasma.

1.3.4.1 Expression du taux NEET en milieu plasma

Dans un plasma à une température T et une densité ρ données, le taux d'excitation nucléaire par effet NEET pour une transition atomique de l'orbitale α vers l'orbitale β , notée $\lambda_{\alpha\beta}^{\text{NEET}}$, est donné par [Mor04] :

$$\lambda_{\alpha\beta}^{\text{NEET}}(T, \rho) = \sum_{C_i} P_{C_i}(T, \rho) \lambda_{\text{NEET}}^{\alpha \rightarrow \beta}(C_i, T, \rho) \quad (1.33)$$

où le terme C_i désigne la configuration électronique initiale, P_{C_i} la probabilité que l'atome soit décrit par cette configuration initiale et $\lambda_{\text{NEET}}^{\alpha \rightarrow \beta}(C_i, \rho, T)$ est le taux NEET de la configuration C_i . Ce dernier s'exprime à partir du produit du taux de décroissance de l'orbitale atomique λ_α et de la probabilité de réaliser l'effet NEET durant cette désexcitation :

$$\lambda_{\text{NEET}}^{\alpha \rightarrow \beta}(C_i, T, \rho) = N_\alpha \left(1 - \frac{N_\beta}{g_\beta} \right) \lambda_\alpha P_{\text{NEET}}(\Gamma_\alpha, \Gamma_\beta, \delta) \quad (1.34)$$

où N_α et N_β sont respectivement les populations électroniques de l'orbitale α et β . Le terme g_β est la dégénérescence de l'orbitale β . L'élément de matrice NEET ne prend pas en compte la population des électrons sur les orbitales de la transition. Le terme $N_\alpha(1 - \frac{N_\beta}{g_\beta})$ tient ainsi compte du nombre de fois où la désexcitation atomique peut avoir lieu. Le taux de désexcitation λ_α est relié à sa largeur Γ_α :

$$\lambda_\alpha = \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} \quad (1.35)$$

ainsi, le taux NEET total dans un plasma de température T et de densité ρ est calculé en sommant sur toutes les transitions atomiques et son expression est donnée par :

$$\lambda_{NEET}(T, \rho) = \sum_{\alpha \rightarrow \beta} \sum_{C_i} P_{C_i}(T, \rho) N_{\alpha} \left(1 - \frac{N_{\beta}}{g_{\beta}}\right) \frac{\Gamma_{\alpha}}{\hbar} P_{NEET}(\Gamma_{\alpha}, \Gamma_{\beta}, \delta_{\alpha\beta}) \quad (1.36)$$

Le calcul du taux NEET dans un plasma est difficile car il faut :

- dénombrer toutes les configurations électroniques et calculer leur énergie,
- déterminer leur probabilité d'existence dans un plasma,
- calculer les largeurs des états atomiques.

Le calcul exhaustif devient impossible lorsque le numéro atomique de l'élément est élevé. Par exemple, pour un état de charge de 42^+ sur le mercure, il y a 10^8 configurations en autorisant les électrons à occuper les orbitales jusqu'à la couche P. C'est pour cette raison que Morel et al. [Mor04] ont développé un formalisme basé sur le modèle de l'atome-moyen relativiste [Roz72] qui permet de calculer le taux NEET à partir d'une description statistique du spectre électronique. C'est sur ce formalisme qu'est basé le code ISOMEX. Nous nous interrogerons sur la validité de ce formalisme pour la description d'un processus résonant qu'est l'effet NEET. Nous reviendrons sur ce point plus en détail dans le prochain chapitre.

1.3.4.2 Principe de la mise en évidence de l'excitation nucléaire dans le cas du ^{201}Hg

Comme nous l'avons dit précédemment, lors d'une interaction laser sur une cible, le rayonnement émis est important (de l'ordre de 10^{10} W), induisant un bruit de fond qui empêche toute détection quelques μs après le tir laser. Afin qu'une mesure de la désexcitation de l'état nucléaire soit possible, la désexcitation doit être décalée en temps c'est à dire que la durée de vie de l'état nucléaire doit être beaucoup plus grande que la durée de vie du plasma. La demi-vie d'un état nucléaire, notée $t_{1/2}$, dépend des taux de désexcitation radiatif et de conversion interne, notés respectivement λ_{γ} et λ_{CI} :

$$\begin{aligned} t_{1/2} &= \frac{\ln 2}{\lambda_{\gamma} + \lambda_{CI}} \\ &= \frac{\ln 2}{\lambda_{\gamma}(1 + \alpha_e)} \end{aligned} \quad (1.37)$$

où α_e est le coefficient de conversion interne. La valeur de la demi-vie de l'état nucléaire est étroitement liée à la valeur du coefficient de conversion interne. Des études précédentes ont montré qu'en perturbant le cortège électronique, le taux de

conversion interne était modifié induisant une modification de la demi-vie de l'état nucléaire [Gos07]. La conversion interne ne peut avoir lieu que si l'énergie de liaison de l'électron est inférieure à l'énergie de la transition nucléaire. L'énergie de liaison des orbitales électroniques dépend de l'état de charge de l'ion. Lorsqu'un atome est ionisé, l'énergie de liaison des électrons augmente car l'écrantage du potentiel nucléaire est moins important. Par exemple, dans le cas du ^{125}Te , la conversion interne est ralentie pour un état de charge de l'ion de 47^+ . La durée de vie de l'état excité passe de 1,5 ns (atome isolé) à 6 ns [Att97].

Dans le cas du ^{201}Hg , la demi-vie de l'état isomère ($t_{1/2}=81$ ns) n'est certainement pas assez longue pour échapper complètement au bruit de fond généré lors de l'interaction laser. E. Wagner et P. Morel [Wag09] ont étudié, à l'aide des codes CATAR [Pau75] et MCDF, la variation de la demi-vie de l'état isomère du ^{201}Hg en fonction de l'état de charge de l'ion. La figure 1.6 présente la variation de la demi-vie du premier état excité du ^{201}Hg en fonction de l'état de charge de l'ion. Pour chaque état de charge, les électrons sont dans la configuration de plus basse énergie.

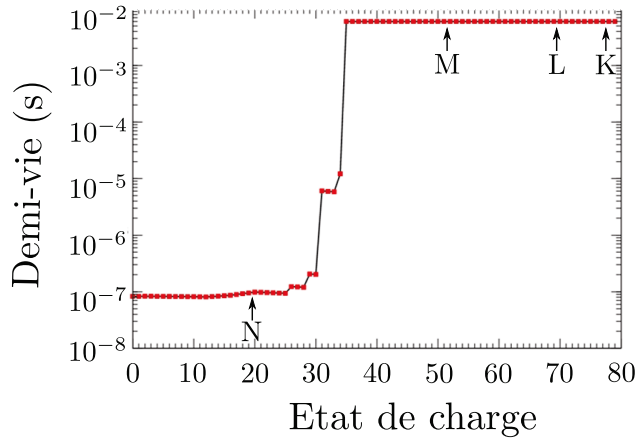


FIGURE 1.6 – Variation de la demi-vie du premier état nucléaire du ^{201}Hg en fonction de l'état de charge. Le début de chaque couche atomique est représenté.

Le comportement de la demi-vie de l'état isomérique en fonction de l'état de charge est très structuré. Pour des états de charge inférieurs ou égaux à 30^+ , la demi-vie de l'état nucléaire n'est pas sensiblement affectée. Par contre, lorsque l'état de charge est compris entre 31^+ et 34^+ , la durée de vie de l'état isomérique est alors de quelques μs . Ensuite, lorsque l'état de charge dépasse 34^+ , l'énergie des électrons restant (notamment les électrons des orbitales $4s_{1/2}$, $4p_{1/2}$ et $4p_{3/2}$ impliqués dans la conversion interne) est plus grande que l'énergie de la transition nucléaire, la désexcitation par conversion interne est alors inhibée et le niveau se désexcite uniquement par une transition radiative.

La désexcitation des noyaux dont l'état de charge de l'ion est supérieur à 30^+ étant fortement ralentie ou inhibée, il est alors possible de transporter les ions d'intérêt

loin de la cible à l'aide d'un dispositif électrostatique (temps de vol de l'ordre de la μs), de les implanter dans un collecteur et de détecter les électrons émis lors de la désexcitation de l'état nucléaire par conversion interne une fois les ions recombinaisonnés.

Avant la réalisation d'une telle expérience plusieurs points sont à vérifier. Nous avons besoin de :

- déterminer la validité des calculs de taux NEET du modèle utilisé dans le code ISOMEX,
- calculer le nombre de noyaux qu'il est possible d'exciter à l'issue d'un tir laser,
- développer et caractériser un dispositif expérimental qui permette de quantifier le nombre d'ions d'états de charge supérieurs à 30^+ atteints loin de la cible,
- trouver une installation laser qui permettrait d'atteindre des états de charge supérieurs à 40^+ dans le plasma (condition pour que l'excitation nucléaire ait lieu) et supérieurs à 30^+ loin de la cible (pour la détection de la désexcitation nucléaire).

1.4 Les enjeux de la thèse

L'objectif de la thèse est double. Une première partie de mon travail a consisté à déterminer la pertinence des taux NEET calculés avec ISOMEX. Comme nous le verrons dans le chapitre suivant, ISOMEX utilise une approche statistique pour décrire le spectre des transitions atomiques et donc le processus NEET. Cependant, le processus NEET est un phénomène résonant, le calcul du taux NEET par cette approche peut être délicat. Durant mon travail de thèse, j'ai développé un code de calcul nommé ADAM (Au-Delà de l'Atome Moyen) afin de calculer le taux NEET en calculant le spectre électronique à partir de l'énergie des configurations réelles (avec un nombre entier d'électrons sur les couches). Cette étude est présentée dans le Chapitre 2.

La deuxième partie concerne le dimensionnement d'une expérience de mise en évidence de l'excitation nucléaire dans un plasma de ^{201}Hg produit par laser. Ce dimensionnement passe dans un premier temps par l'estimation du nombre de noyaux excités qu'il serait possible de produire lors d'une interaction laser. Nous verrons que pour atteindre les états de charge résonants ($40^+ \leq \overline{Q} \leq 50^+$) une intensité laser supérieure ou égale à 10^{14} W/cm^2 est nécessaire. Le couplage d'un code hydrodynamique, réalisé à cette intensité laser, avec une cartographie du taux NEET, est ainsi réalisé dans le Chapitre 3.

Le principe de l'expérience finale est de transporter les ions d'états de charge supérieurs à 30^+ loin de la cible afin de s'affranchir du bruit de fond produit lors de l'interaction laser. Le dimensionnement de cette expérience nécessite de connaître le nombre d'ions à ces états de charge. A cette fin, un déviateur électrostatique a été conçu. Ce système a été caractérisé sur un laser Nd :Yag d'intensité 10^{13} W/cm^2 et de cadence de tirs élevée. La description de ce travail fera l'objet du Chapitre 4.

Excitation du ^{201}Hg par effet NEET dans un plasma à l'équilibre thermodynamique

Le dimensionnement d'une expérience de mise en évidence de l'excitation nucléaire du premier état excité du ^{201}Hg dans un plasma nécessite d'estimer le taux d'excitation par effet NEET et l'incertitude aux modèles utilisés. Le calcul du taux NEET présenté dans le chapitre précédent (figure 1.4) repose sur plusieurs approximations pour décrire l'ensemble des configurations électroniques présentes dans le plasma. Dans un plasma dense et chaud, les atomes sont partiellement ionisés et évoluent dans un milieu où les électrons libres et les ions sont mélangés. Les atomes sont par ailleurs dans des configurations électroniques excitées. Plus le numéro atomique de l'élément est élevé, plus le nombre de configurations électroniques est important. Dans le modèle de l'atome moyen utilisé dans le code ISOMEX (figure 1.4), la prise en compte des différentes configurations électroniques est effectuée de façon statistique en utilisant le modèle de l'atome-moyen [Roz72] avec élargissement gaussien [Mor04]. Le modèle de l'atome-moyen consiste à considérer un atome fictif dont la configuration électronique est la moyenne des configurations électroniques des atomes du plasma. L'influence des différentes configurations électroniques sur les énergies des transitions atomiques est modélisée par un élargissement gaussien autour de la configuration moyenne (on parle alors d'atome moyen gaussien ou AMG). La simplicité d'une telle description du spectre atomique peut sembler très discutable dans le cas d'un processus résonant comme l'effet NEET.

Pour déterminer les limites de validité des approximations effectués dans l'AMG pour le processus NEET, nous avons développé un code, nommé ADAM (Au-Delà de l'Atome-Moyen) qui permet le calcul des configurations électroniques réelles à partir des résultats de l'atome-moyen : cette méthode consiste à éclater les configurations autour de celle de l'atome-moyen (on parle d'éclatement de configurations dans la suite du chapitre). La comparaison des taux NEET calculés avec ADAM et l'AMG va permettre de déterminer les régions en température et densité où les prédictions réalisées par l'AMG sont pertinentes. Enfin, nous montrerons que les incertitudes sur le calcul des énergies des transitions atomiques, rendent illusoire un calcul précis du taux NEET et que ce dernier ne peut être que borné. Nous déterminerons les fluctuations autour de la valeur moyenne du taux NEET dues à l'imprécision sur les valeurs calculées des énergies des transitions atomiques.

Ce chapitre a donc pour objectif : la détermination des zones de validité, dans le plan densité-température, des calculs de taux NEET effectués dans le cadre du modèle de l'atome-moyen gaussien, et l'estimation de la dispersion du taux NEET compte tenu des incertitudes sur les énergies des transitions atomiques.

Pour cela, nous commencerons par présenter le modèle de l'AMG utilisé dans ISOMEX et nous détaillerons les méthodes et les approximations réalisées pour calculer le taux d'excitation par effet NEET. Ensuite, nous comparerons le spectre radiatif de l'AMG avec les résultats d'un code de physique atomique détaillé afin de vérifier les approximations de l'AMG. Nous montrerons qu'un tel calcul détaillé pour calculer le taux NEET dans tout le plan température, densité n'est pas possible à cause du trop grand nombre de configurations mises en jeu. Enfin, dans une dernière partie, nous aborderons le code ADAM qui a été développé pour le calcul du taux NEET en éclatement de configurations autour de l'atome-moyen. Ce code nous permettra d'estimer les fluctuations du taux NEET autour de la moyenne calculée par l'AMG. Les conditions de validité des taux NEET pour l'AMG seront discutées dans une dernière partie.

2.1 Le modèle de l'Atome-Moyen

Le modèle de l'atome-moyen a été proposé par B.Rozsnyai en 1972 [Roz72] afin de déterminer l'ensemble des caractéristiques moyennes (état de charge, fonctions d'onde électroniques...) d'un atome dans un plasma à une température T_e et une densité ρ données. L'application de ce modèle pour le calcul du taux NEET a été initialement proposée par P.Morel et al. [Mor04] et implémentée au sein du code ISOMEX. Dans cette partie, nous détaillerons le calcul du taux NEET dans le cadre du modèle de l'atome-moyen gaussien et nous soulignerons les modifications apportées à la version d'ISOMEX existante au début de ma thèse. Enfin, nous présenterons les résultats du calcul de taux NEET dans le cas du ^{201m}Hg pour une grande gamme de températures et densités de plasma.

2.1.1 Description du modèle

2.1.1.1 Principe

Le modèle de l'atome-moyen permet de modéliser les propriétés atomiques des ions du plasma par un ion fictif dont les propriétés sont la moyenne de celles des atomes présents dans le plasma. La population électronique des orbitales et son état de charge peuvent ainsi être tous deux non entiers.

Dans le calcul de l'atome-moyen, les électrons liés sont traités en résolvant les équations de Dirac-Fock avec des conditions aux limites sur les fonctions d'onde imposées par la densité (voir annexe B). Les probabilités d'occupation des orbitales atomiques sont déterminées par la statistique de Fermi-Dirac, ce qui suppose un

plasma à l'équilibre thermodynamique. La convergence du calcul auto-cohérent est réalisée sur le potentiel électrostatique. Ainsi, le potentiel moyen vu par un électron est constitué des fonctions d'onde des électrons individuels. On parle alors de champ-moyen auto-cohérent. A l'aide de ce modèle, on dispose d'une description moyenne des propriétés atomiques dans le plasma à une température et une densité donnée à travers les paramètres moyens suivants :

- la somme de l'énergie cinétique moyenne et de l'énergie d'interaction moyenne électron-noyau \overline{U}_k d'un électron dans l'orbitale k ,
- l'énergie d'interaction moyenne électron-électron $\overline{V}_{kk'}$ entre deux orbitales indicées k et k' ,
- les fonctions d'onde moyennes monoélectroniques $\overline{\psi}$ des orbitales,
- l'état de charge moyen \overline{Q} du plasma,
- le potentiel chimique μ qui permet d'assurer l'électro-neutralité du plasma,
- les populations moyennes \overline{N}_k des orbitales,
- les probabilités moyennes d'occupation $\overline{P}_k = \frac{\overline{N}_k}{g_k}$ où g_k est la dégénérescence de l'orbitale k .

Pour la suite, nous garderons les mêmes notations pour discuter de ces quantités.

2.1.1.2 Énergie d'une transition moyenne

Dans le modèle de l'atome-moyen, il n'est pas possible de définir une énergie de transition moyenne entre deux configurations car l'atome n'est décrit que par une seule configuration moyenne. Pour calculer une énergie de transition moyenne, nous allons considérer des configurations électroniques réelles. Une transition monoélectronique implique le passage d'un seul électron d'une orbitale α de la configuration initiale C_i (2.1) vers l'orbitale β d'une configuration finale C_f (2.2) avec :

$$C_i = (n_1 l_1 j_1)^{N_1} (n_2 l_2 j_2)^{N_2} \dots (n_\beta l_\beta j_\beta)^{N_\beta} \dots (n_\alpha l_\alpha j_\alpha)^{N_\alpha} \dots \quad (2.1)$$

$$C_f = (n_1 l_1 j_1)^{N_1} (n_2 l_2 j_2)^{N_2} \dots (n_\beta l_\beta j_\beta)^{N_\beta+1} \dots (n_\alpha l_\alpha j_\alpha)^{N_\alpha-1} \dots \quad (2.2)$$

où n_i est le nombre quantique principal, l_i le moment cinétique orbital, j_i le moment cinétique total de l'orbitale i et N_i le nombre d'électrons dans celle-ci. L'énergie d'une configuration $E(C)$ peut être calculée par [Cow81] :

$$E(C) = \sum_k N_k U_k + \frac{1}{2} \sum_k \sum_{k'} N_{k'} (N_k - \delta_{kk'}) V_{kk'} \quad (2.3)$$

L'expression précédente est composée d'une partie à un corps avec l'énergie d'interaction électron-noyau et l'énergie cinétique de l'électron dans l'orbitale k . La partie à deux corps tient compte de l'interaction coulombienne électron-électron. L'énergie de la transition se calcule en faisant la différence d'énergie entre les configurations initiale et finale :

$$h\nu_{\alpha\rightarrow\beta} = E(C_i) - E(C_f) \quad (2.4)$$

En remplaçant les énergies U_k et $V_{kk'}$ par leur valeur moyenne calculée à l'aide du modèle de l'atome moyen (cette approximation sera discutée dans la partie 2.3.4.1), on montre que l'énergie de la transition entre les deux configurations devient :

$$\begin{aligned} h\nu_{\alpha\rightarrow\beta} &= \bar{U}_\alpha - \bar{U}_\beta + \sum_k (N_k - \delta_{k\alpha})(\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k}) \\ &= \bar{U}_\alpha - \bar{U}_\beta - (\bar{V}_{\alpha\alpha} - \bar{V}_{\beta\alpha}) + \sum_k N_k(\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k}) \end{aligned} \quad (2.5)$$

L'expression (2.5) précédente peut être réécrite avec la quantité $\sum_k \bar{N}_k(\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})$ faisant intervenir les populations moyennes \bar{N}_k :

$$h\nu_{\alpha\rightarrow\beta} = \bar{h\nu}_{\alpha\rightarrow\beta} + \sum_k (\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})(N_k - \bar{N}_k) \quad (2.6)$$

avec $\bar{h\nu}_{\alpha\rightarrow\beta}$, l'énergie de la transition moyenne :

$$\boxed{\bar{h\nu}_{\alpha\rightarrow\beta} = \bar{U}_\alpha - \bar{U}_\beta - (\bar{V}_{\alpha\alpha} - \bar{V}_{\beta\alpha}) + \sum_k (\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})\bar{N}_k} \quad (2.7)$$

Notons qu'au début de mon travail de thèse, l'énergie moyenne était calculée dans ISOMEX par la relation (2.8) [Mor04] :

$$\bar{h\nu}_{\alpha\rightarrow\beta} = \bar{U}_\alpha - \bar{U}_\beta + (\bar{V}_{\alpha\beta} - \bar{V}_{\alpha\alpha})\bar{P}_\alpha + (\bar{V}_{\beta\beta} - \bar{V}_{\alpha\beta})\bar{P}_\beta + \sum_k (\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})\bar{N}_k \quad (2.8)$$

Pour une même transition, la différence en énergie entre les deux expressions est de l'ordre de la dizaine d'eV pour une transition atomique qui implique des orbitales périphériques et d'une centaine d'eV pour des transitions impliquant des orbitales internes. La tableau 2.1 présente une comparaison des énergies des transitions E1 vers la couche K du Cl^{15+} entre les deux calculs et l'expérience¹. Le calcul d'atome-moyen est réalisé à une température de 250 eV et une densité de 10^{-2} g/cm³ afin d'obtenir un état de charge moyen des atomes du plasma de 15^+ . Dans cet exemple, nous obtenons des valeurs très proches des valeurs expérimentales tandis que l'ancienne version d'ISOMEX obtient des énergies qui sont une centaine d'eV plus faible. Notons par ailleurs que l'approximation qui consiste à remplacer les énergies U_k et $V_{kk'}$ par leur valeur moyenne paraît pertinente.

Dans la suite, sauf mention contraire, tous les calculs réalisés dans le cadre du modèle de l'AMG ont été réalisés avec la version du code ISOMEX dans laquelle la détermination des énergies des transitions atomiques moyennes a été corrigée.

1. voir www.cfa.harvard.edu/ampci/kelly.pl

Transition	E(exp)	E(ce travail)	E(ancien ISOMEX)
2p _{1/2} -1s _{1/2}	2,775	2.782	2,648
2p _{3/2} -1s _{1/2}	2,790	2.785	2,652
3p _{1/2} -1s _{1/2}	3,270	3.273	3,151
4p _{1/2} -1s _{1/2}	3,441	3.443	3,324
5p _{1/2} -1s _{1/2}	3,519	3.521	3,404
6p _{1/2} -1s _{1/2}	3,561	3.564	3,446

TABEAU 2.1 – Comparaison des énergies des transitions expérimentales (transitions vers la couche K) du Cl¹⁵⁺ et des transitions moyennes calculées par ce travail et par l'ancienne version d'ISOMEX. Les énergies des transitions sont en keV.

2.1.1.3 L'atome-moyen avec élargissement gaussien (AMG)

Dans la partie précédente, nous avons déterminé l'expression permettant le calcul d'une énergie de transition pour la configuration atomique moyenne compte tenu de la température et de la densité du plasma. Cependant, pour chaque configuration électronique **réelle** initiale autorisant une transition $\alpha \rightarrow \beta$ donnée, l'énergie de cette transition est modifiée par rapport à l'énergie de la transition moyenne. Ceci provoque un élargissement important autour de l'énergie de la transition moyenne. Pour tenir compte de cet effet, il est possible d'estimer, grâce à la théorie classique des fluctuations [Lan85], l'influence des différentes configurations électroniques sur la distribution en énergie de la transition autour de son énergie moyenne. C'est une description statistique du spectre de transition. La théorie classique des fluctuations permet de calculer la variance de toute grandeur physique ξ , dépendante des populations des couches atomiques, autour de la valeur moyenne $\bar{\xi}$ (2.9) :

$$\sigma_{\xi}^2 = \overline{(\xi - \bar{\xi})^2} \quad (2.9)$$

Développons ξ au voisinage de l'équilibre et notons $\Delta N_k = N_k - \bar{N}_k$ les fluctuations des populations autour des populations moyennes :

$$\xi(\Delta N_k) = \xi(0) + \sum_{k=1}^{k_{max}} \frac{\partial \xi}{\partial \Delta N_k} \Delta N_k \quad (2.10)$$

où $\xi(0)$ est la valeur de ξ sans fluctuation sur les populations, soit $\xi(0) = \bar{\xi}$. On calcule ainsi la variance

$$\sigma_{\xi}^2 = \overline{(\xi - \bar{\xi})^2} \approx \sum_{k=1}^{k_{max}} \sum_{k'=1}^{k_{max}} \frac{\partial \xi}{\partial \Delta N_k} \frac{\partial \xi}{\partial \Delta N_{k'}} \overline{\Delta N_k \Delta N_{k'}} \quad (2.11)$$

où $\overline{\Delta N_k \Delta N_{k'}} = C_{kk'}$ est appelée matrice des corrélations [Fau97]. Dans un premier temps, nous allons déterminer l'expression de cette matrice dans le cas où les

corrélations électroniques sont négligées (approximation des électrons indépendants). Pour une orbitale atomique k donnée, la variance des populations autour de la population moyenne peut être déterminée par la variance binomiale (cf. Annexe C), appelée variance non corrélée $\sigma_{nc,k}^2$, qui s'écrit :

$$\sigma_{nc,k}^2 = \bar{N}_k(1 - \bar{P}_k) \quad (2.12)$$

La matrice des corrélations C est connue par sa matrice inverse w . Dans le cas non corrélée, ces deux matrices sont diagonales et les éléments de w s'expriment par :

$$w_{kk'} = \frac{\delta_{kk'}}{\sigma_{nc,k}^2} \quad (2.13)$$

Dans le paragraphe précédent, nous avons vu que l'énergie d'une transition $h\nu_{\alpha \rightarrow \beta}$ s'exprime par la relation (2.7) :

$$h\nu_{\alpha \rightarrow \beta} = \bar{h\nu}_{\alpha \rightarrow \beta} + \sum_k (\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})(N_k - \bar{N}_k) \quad (2.14)$$

En appliquant la relation (2.11) sur (2.14), il vient :

$$\sigma_{nc}^2(h\nu_{\alpha \rightarrow \beta}) = \sum_k^{k_{max}} \sum_{k'}^{k_{max}} \frac{\partial(h\nu_{\alpha \rightarrow \beta})}{\partial \Delta N_k} \frac{\partial(h\nu_{\alpha \rightarrow \beta})}{\partial \Delta N_{k'}} C_{kk'} \quad (2.15)$$

il s'ensuit que la variance non corrélée de la transition $\alpha \rightarrow \beta$ s'écrit comme :

$$\sigma_{nc}^2(h\nu_{\alpha \rightarrow \beta}) = \sum_k^{k_{max}} (\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})^2 \sigma_{nc,k}^2 \quad (2.16)$$

Si nous voulons tenir compte des interactions électroniques, la variance associée est appelée variance corrélée σ_{corr}^2 . Il est possible de déterminer son comportement dans deux cas extrêmes de température :

- à basse température, la configuration électronique tend vers la configuration fondamentale, la variance sur les populations est alors minimale. L'interaction entre les électrons est alors importante,
- à haute température, la variance sur les populations est maximale car les électrons occupent alors toutes les places disponibles. L'interaction entre les électrons est alors négligeable, la variance corrélée tend alors vers la variance non corrélée.

La variance corrélée doit ainsi dépendre de l'interaction électron-électron et de la température. La démonstration complète peut être trouvée dans la référence [Fau97]. Les éléments de la matrice w , avec prise en compte de l'interaction entre les électrons, s'expriment alors par :

$$w_{kk'} = \frac{\bar{V}_{kk'}}{T_e} + \frac{\delta_{kk'}}{\sigma_{nc,k}^2} \quad (2.17)$$

En appliquant la relation (2.11) de la même manière que dans le cas de la variance non corrélée, on obtient la variance corrélée de l'énergie de la transition $\alpha \rightarrow \beta$:

$$\sigma_{corr}^2(h\nu_{\alpha \rightarrow \beta}) = \sum_k^{k_{max}} \sum_{k'}^{k_{max}} (\bar{V}_{\alpha k} - \bar{V}_{\beta k})(w^{-1})_{kk'} (\bar{V}_{\alpha k'} - \bar{V}_{\beta k'}) \quad (2.18)$$

Dans ce modèle, chaque transition atomique moyenne est donc élargie par une gaussienne dont la largeur est donnée par la variance corrélée σ_{corr}^2 . La figure 2.1 présente la différence entre le modèle de l'Atome-Moyen et de l'Atome-Moyen Gaussien (AMG). Pour un plasma de mercure à 10^{-2} g/cm³ pour des températures comprises entre 10 eV et 1 keV, la valeur de σ_{corr} est généralement comprise entre 10 et 50 eV.

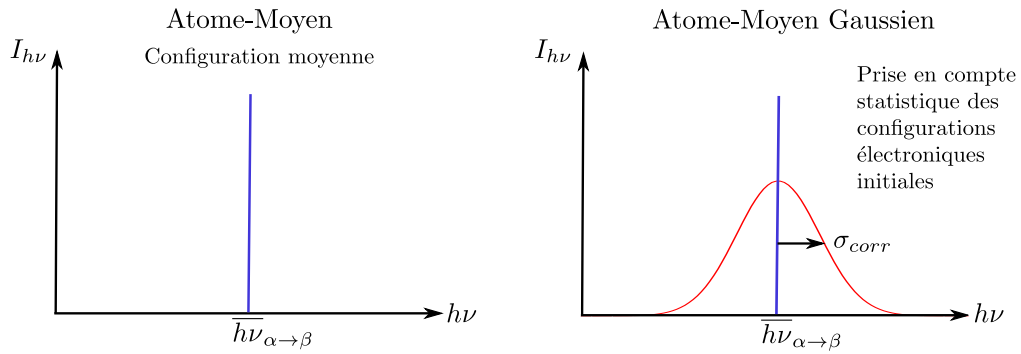


FIGURE 2.1 – Schéma représentant l'élargissement de la distribution en énergie de la transition $\alpha \rightarrow \beta$ par la prise en compte des différentes configurations électroniques initiales.

2.1.1.4 Expression du taux radiatif et du taux NEET en atome-moyen

Dans la suite, nous ne calculerons que deux processus de désexcitation atomique : un processus radiatif (l'émission spontanée) et un non-radiatif (l'effet NEET).

L'expression du taux NEET dans un milieu plasma, dans le modèle de l'AMG, a été proposée en 2004 par P.Morel et al. [Mor04]. Nous reprenons ici les éléments de la démonstration permettant d'aboutir à son expression. Le point de départ est l'expression du taux d'excitation par effet NEET en configurations pour une transition $\alpha \rightarrow \beta$:

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \sum_{C_i} P(C_i) \lambda_{\alpha} N_{\alpha} (1 - P_{\beta}) P_{NEET} \quad (2.19)$$

où α et β désignent respectivement l'orbitale initiale et finale de la transition atomique. Le terme $P(C_i)$ est la probabilité que l'atome soit décrit par la configuration initiale, λ_{α} est le taux total de décroissance de la configuration initiale, N_{α} et

$P_\beta = \frac{N_\beta}{g_\beta}$ sont respectivement le nombre d'électrons dans l'orbitale initiale et la probabilité d'occupation dans l'orbitale finale. Enfin, P_{NEET} est la probabilité qu'une désexcitation atomique engendre une excitation nucléaire. On exprime la probabilité de réaliser l'effet NEET P_{NEET} , ainsi que le taux de décroissance λ_α par :

$$\lambda_\alpha = \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar}$$

$$P_{NEET} = \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha}\right) \frac{|W_{\alpha\beta}|^2}{\delta^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} \quad (2.20)$$

où Γ_k est la largeur de l'orbitale k , δ est le mismatch en énergie et $|W_{\alpha\beta}|$ est l'élément de matrice de couplage atome-noyau défini dans le chapitre 1. Le taux NEET en configurations devient alors :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \sum_{C_i} P(C_i) \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} N_\alpha (1 - P_\beta) \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha}\right) \frac{|W_{\alpha\beta}|^2}{\delta^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} \quad (2.21)$$

La configuration finale est complètement définie par la configuration initiale. Le taux NEET se calcule donc par une somme discrète sur toutes les configurations, pondérées par leur probabilité. Cette somme discrète contient en général un très grand nombre de termes. Si on considère que la distribution des mismatches peut être représentée approximativement par une loi de distribution gaussienne, alors la somme discrète d'une fonction f quelconque liée aux configurations peut être transformée en une intégrale par :

$$\sum_{C_i} P(C_i) f(C_i) \approx \int f(u) dP \quad (2.22)$$

où dP est la loi de distribution gaussienne normalisée à l'unité. Le mismatch de chaque configuration, noté u , est distribué sur cette gaussienne autour de la valeur du mismatch moyen $\bar{\delta}$ défini comme :

$$\bar{\delta} = \overline{h\nu_{\alpha \rightarrow \beta}} - E_{\text{nuc}} \quad (2.23)$$

où $\overline{h\nu_{\alpha \rightarrow \beta}}$ est l'énergie moyenne de la transition atomique et E_{nuc} l'énergie de la transition nucléaire. L'écart-type de la gaussienne est donné par l'élargissement corrélé σ_{corr} défini dans la partie précédente. La probabilité élémentaire dP s'exprime alors :

$$dP = \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{\text{corr}}} \exp\left(-\frac{(u - \bar{\delta})^2}{2\sigma_{\text{corr}}^2}\right) du \quad (2.24)$$

Ainsi à partir de l'équation (2.21), on effectue le passage à l'intégrale :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \int \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} N_\alpha (1 - P_\beta) \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha}\right) \frac{|W_{\alpha\beta}|^2}{u^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} dP \quad (2.25)$$

Les quantités dépendantes de α et β deviennent dépendantes de u . En remplaçant la probabilité élémentaire dP par son expression (2.24), il vient :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \int \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} N_\alpha (1 - P_\beta) \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha} \right) \frac{|W_{\alpha\beta}|^2}{u^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}} \exp\left(-\frac{(u - \bar{\delta})^2}{2\sigma_{corr}^2}\right) du \quad (2.26)$$

Pour aider à résoudre cette intégrale, on pose maintenant deux fonctions $f(u)$ et $g(u)$ telles que :

$$\begin{aligned} f(u) &= \frac{1}{u^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} \\ g(u) &= \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} N_\alpha (1 - P_\beta) \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha} \right) |W_{\alpha\beta}|^2 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}} \exp\left(-\frac{(u - \bar{\delta})^2}{2\sigma_{corr}^2}\right) \end{aligned} \quad (2.27)$$

On peut alors ré-exprimer l'intégrale (2.26) à partir de ces fonctions :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \int f(u)g(u)du \quad (2.28)$$

La fonction $g(u)$ est approximativement une gaussienne dont l'écart-type est l'élargissement corrélé σ_{corr} tandis que la fonction $f(u)$ est une fonction lorentzienne dont la largeur dépend des largeurs atomiques Γ_k . Généralement, les largeurs atomiques sont beaucoup plus faibles que la largeur corrélée ($\sigma_{corr} > 10$ eV et on verra en 2.3.1.2 que $\Gamma \sim 10$ meV). Ainsi, la fonction $f(u)$ est non nulle dans un intervalle étroit dans lequel $g(u)$ varie très lentement. On peut donc approcher l'intégrale du produit $f(u)g(u)$ en supposant $g(u)$ constant à la valeur $g(u_0)$ où u_0 est la valeur du mismatch pour laquelle $f(u)$ est maximale :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \int f(u)g(u)du \approx g(u_0) \int f(u)du \quad (2.29)$$

Dans notre cas, ce maximum est obtenu pour un mismatch en énergie nul : $u_0 = 0$. L'expression (2.26) s'écrit alors selon :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} N_\alpha (1 - P_\beta) \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha} \right) |W_{\alpha\beta}|^2 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}} \exp\left(-\frac{\bar{\delta}^2}{2\sigma_{corr}^2}\right) \int \frac{1}{u^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} du \quad (2.30)$$

Le résultat de l'intégrale est donné par la relation suivante :

$$\int \frac{1}{u^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} du = \frac{2\pi}{\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta} \quad (2.31)$$

L'équation (2.30) devient :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \frac{2\pi}{\hbar} N_{\alpha} (1 - P_{\beta}) |W_{\alpha\beta}|^2 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}} \exp\left(-\frac{\bar{\delta}^2}{2\sigma_{corr}^2}\right) \quad (2.32)$$

qui, dans le cadre du modèle de l'atome-moyen, devient :

$$\boxed{\bar{\lambda}_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} (s^{-1}) \approx \frac{2\pi}{\hbar} \bar{N}_{\alpha} (1 - \bar{P}_{\beta}) |\bar{W}_{\alpha\beta}|^2 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}} \exp\left(-\frac{\bar{\delta}^2}{2\sigma_{corr}^2}\right)} \quad (2.33)$$

Le taux NEET total s'écrit alors comme la somme sur toutes les transitions atomiques possibles. L'expression (2.33) du taux NEET dans le modèle de l'AMG ne dépend plus que de la largeur statistique σ_{corr} , de la population moyenne de l'orbitale initiale \bar{N}_{α} et de la probabilité d'occupation de l'orbitale finale \bar{P}_{β} . En particulier, elle est complètement indépendante des largeurs atomiques Γ .

De la même manière, le taux radiatif dans le modèle de l'AMG, noté $\bar{\lambda}^{RAD}$ [$s^{-1} \cdot eV^{-1}$], s'exprime, pour une transition d'une orbitale α vers une orbitale β , de la manière suivante :

$$\boxed{\bar{\lambda}_{\alpha \rightarrow \beta}^{RAD} (h\nu) \approx \bar{A}_{\alpha\beta} \bar{N}_{\alpha} (1 - \bar{P}_{\beta}) \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}} \exp\left(-\frac{(h\nu - \bar{h\nu}_{\alpha\beta})^2}{2\sigma_{corr}^2}\right)} \quad (2.34)$$

où $\bar{A}_{\alpha\beta}$ est le taux d'émission spontanée à une particule [Gra74], \bar{N}_{α} le nombre d'électrons de l'orbitale initiale α et \bar{P}_{β} la probabilité d'occupation d'un électron dans l'orbitale finale β .

2.1.2 Calcul du taux NEET dans le cadre de l'AMG sur le ^{201m}Hg

Nous avons vu au chapitre 1 que l'effet NEET est un processus résonant qui nécessite que l'énergie d'une transition atomique soit à peu près égale à l'énergie de la transition nucléaire. À l'aide du modèle de l'atome moyen, nous allons déterminer les transitions atomiques qui résonnent avec la transition nucléaire à 1,565 keV du ^{201}Hg . Nous calculerons ensuite le taux d'excitation par effet NEET pour différentes températures du plasma. Dans la suite, les calculs sont réalisés à une densité de plasma de 10^{-2} g/cm^3 , densité à laquelle un laser de longueur d'onde de 1 μm dépose le maximum de son énergie (cf. Chapitre 3).

2.1.2.1 Détermination des transitions atomiques résonantes

Dans la section précédente, nous avons montré que l'énergie moyenne d'une transition atomique dépend explicitement des populations atomiques (équation (2.7)).

Ainsi, une transition atomique non résonante pour un atome neutre, peut devenir résonante pour un certain état de charge. La figure 2.2 représente la variation de l'état de charge moyen des atomes du plasma en fonction de la température. On constate que l'état de charge moyen du plasma peut doubler sur une gamme en température de 100 à 400 eV et passer du 26^+ à 52^+ .

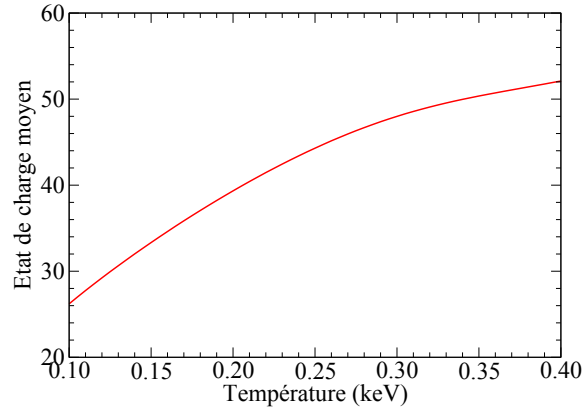


FIGURE 2.2 – Variation de l'état de charge moyen du ^{201}Hg en fonction de la température du plasma à 10^{-2} g/cm^3 calculé par le modèle de l'atome moyen.

L'énergie moyenne de la transition est calculée pour chaque valeur de l'état de charge moyen des atomes du plasma et pour chaque transition $\alpha \rightarrow \beta$. On sélectionne alors les transitions M1 et E2 qui résonnent avec la transition nucléaire. La figure 2.3 représente l'évolution de l'énergie moyenne des quatre transitions atomiques dominantes qui résonnent avec l'énergie de la transition nucléaire (1,565 keV) en fonction de l'état de charge moyen.

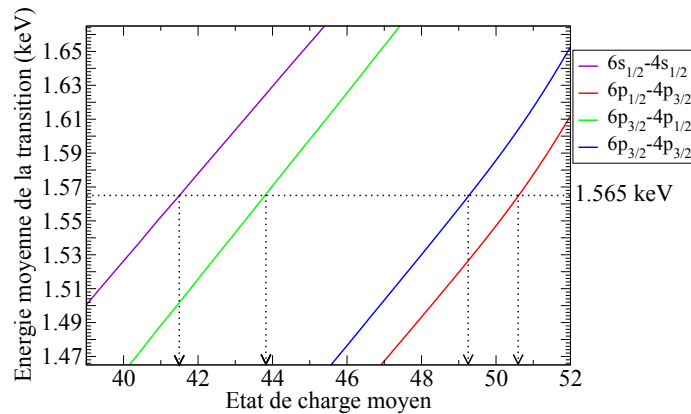


FIGURE 2.3 – Variation de l'énergie de transition moyenne pour les quatre transitions dominantes qui résonnent avec la transition nucléaire.

Dans la région autour de l'état de charge moyen 42^+ , la transition M1, $6s_{1/2}-4s_{1/2}$ est résonante. Pour des états de charge supérieurs à 44^+ , les transitions M1+E2,

$6p_{1/2}-4p_{3/2}$, $6p_{3/2}-4p_{1/2}$ et $6p_{3/2}-4p_{3/2}$ sont résonantes avec la transition nucléaire. Ces états de charge sont atteignables pour des températures de plasma comprises entre 250 et 400 eV (cf. figure 2.2). Nous retrouvons par ailleurs les transitions résonantes déterminées à l'aide de l'ancienne version d'ISOMEX [Mé07][Gos07]. La figure 2.4 compare les énergies moyennes des transitions par rapport à celles calculées par l'ancienne version d'ISOMEX en fonction de l'état de charge moyen. Selon la transition atomique impliquée, l'écart en énergie peut atteindre 20 eV. Autour de la résonance (1,565 keV), l'état de charge moyen résonant peut être différent d'une unité de charge entre les deux calculs. Cet écart est dû à la modification du calcul de l'énergie de la transition moyenne par la relation (2.7).

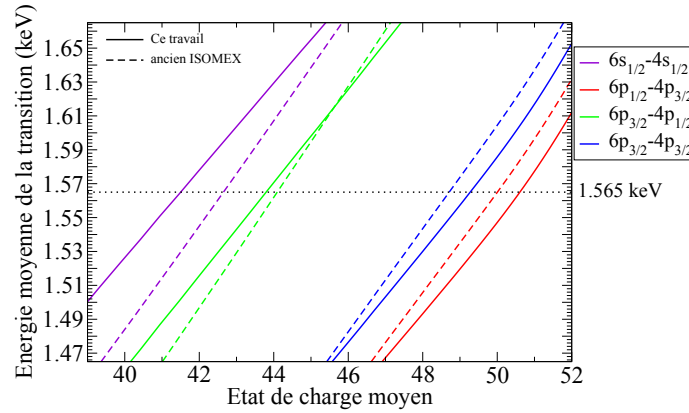


FIGURE 2.4 – Comparaison des énergies des transitions moyennes calculées dans cette thèse et par l'ancienne version d'ISOMEX.

La figure 2.5 présente l'évolution de la probabilité d'occupation d'un électron dans la couche $n = 6$ (couche P) et la probabilité d'une lacune sur la couche $n = 4$ (couche N) en fonction de la température entre 100 et 400 eV. Pour une température de 100 eV, la probabilité qu'un électron soit présent sur la couche P est de l'ordre de 10^{-2} , tandis que la probabilité qu'une lacune soit présente dans la couche N est de l'ordre de quelques 10^{-3} . En augmentant la température jusqu'à 400 eV, la probabilité d'une lacune en couche N augmente jusqu'à atteindre l'unité tandis que celle d'avoir un électron en couche P diminue à 10^{-3} . Ainsi, pour ces transitions atomiques, la probabilité de trouver à la fois un électron dans l'orbitale initiale et un trou dans l'orbitale finale est comprise globalement entre 10^{-5} ($T=100$ eV) et 10^{-3} ($T=400$ eV).

La figure 2.6 représente la valeur de l'élément de matrice de couplage pour les quatre transitions résonantes pour les composantes M1 (figure a) et E2 (figure b) en fonction de l'état de charge moyen des atomes du plasma. Il est intéressant de noter que pour les transitions $6p_{1/2}-4p_{3/2}$, $6p_{3/2}-4p_{1/2}$, $6p_{3/2}-4p_{3/2}$ qui ont à la fois une composante M1 et E2, les éléments de matrice sont plus importants de plusieurs ordres de grandeur pour la composante E2. De plus, pour une transition donnée, l'élément de matrice ne varie que d'un facteur 3,5 pour des états de charge moyens

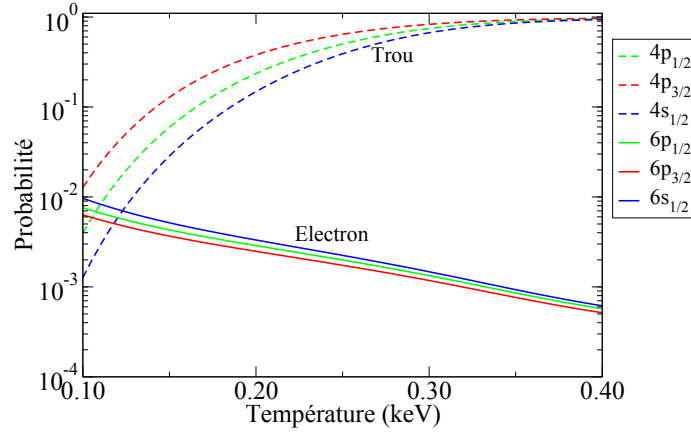


FIGURE 2.5 – Variation de la probabilité moyenne d'occupation d'un électron dans les orbitales $6s_{1/2}$, $6p_{1/2}$, $6p_{3/2}$ (en trait plein) et d'un trou pour les orbitales $4s_{1/2}$, $4p_{1/2}$, $4p_{3/2}$ (en pointillé) en fonction de la température.

allant de 30^+ à 55^+ . Cette augmentation est due à la baisse de l'écrantage du noyau qui entraîne une plus grande probabilité de présence des électrons à son voisinage.

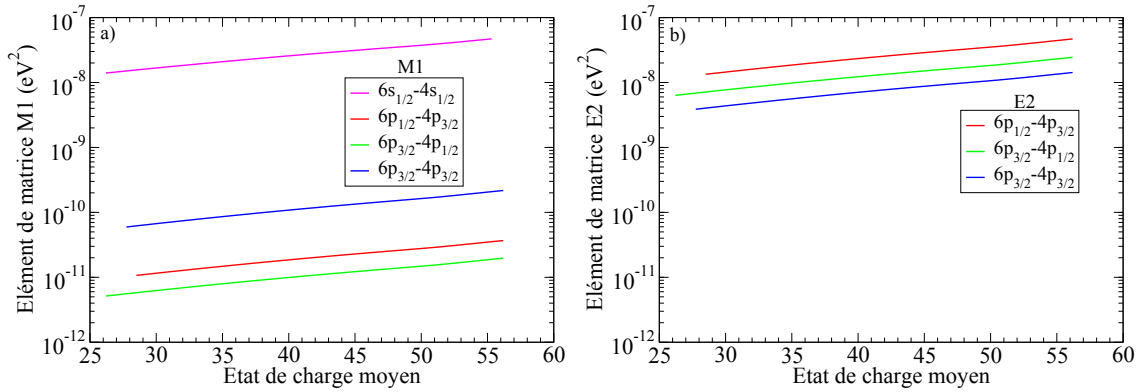


FIGURE 2.6 – Variation de l'élément de matrice de couplage en fonction de l'état de charge moyen pour a) la composante M1 et b) la composante E2.

2.1.2.2 Taux d'excitation par effet NEET

Après identification des transitions résonantes, le taux d'excitation par effet NEET est calculé en utilisant la relation (2.33). Pour chaque température, le taux NEET total s'écrit comme la somme des taux NEET de toutes les transitions atomiques de type M1 et E2. La figure 2.7 représente le taux NEET à 10^{-2} g/cm³ en fonction de la température (figure a) et de l'état de charge moyen des atomes du plasma (figure b).

Les taux d'excitation NEET calculés atteignent des valeurs comprises entre 10^3 - 10^4 excitations par seconde à une densité de 10^{-2} g/cm³. Ces valeurs sont très faibles

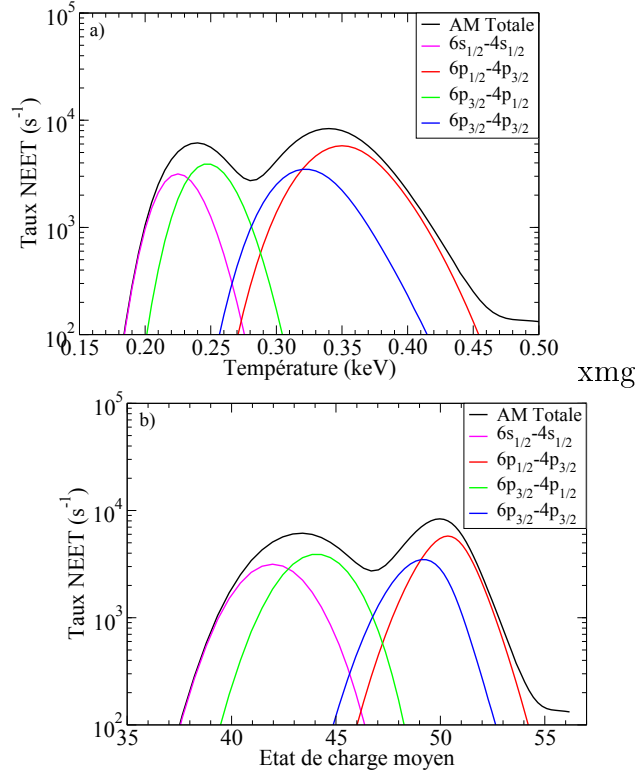


FIGURE 2.7 – Variation du taux NEET du niveau à 1,565 keV du ^{201}Hg en fonction a) de la température de plasma et b) de l'état de charge moyen pour une densité de 10^{-2} g/cm^3 .

comparées aux taux de transition radiatif E1 de la couche P à la couche N qui sont de l'ordre de 10^{12} s^{-1} . Les taux d'excitation par effet NEET sont plus élevés dans deux régions. Le premier maximum est centré autour d'une température de 230-240 eV ($\bar{Q} \approx 42$) et atteint des taux de 7×10^3 excitations par seconde. Le deuxième maximum est centré sur la température de 340 eV ($\bar{Q} \approx 50$) avec des taux de 9×10^3 excitations par seconde. Ceci donne une plage en température comprise entre 210 et 410 eV ($40 < \bar{Q} < 53$) où les taux d'excitation sont supérieurs à 10^3 s^{-1} .

En calculant le taux d'excitation par effet NEET pour différentes densités de plasma, nous pouvons tracer une cartographie du taux NEET en température, densité (T_e, ρ) et état de charge moyen, densité (\bar{Q}, ρ) (Figure 2.8).

Les taux NEET en (T_e, ρ) présentent de grandes variations. En effet, le processus étant un phénomène résonant, seules certaines régions thermodynamiques bien précises permettent d'atteindre la résonance. On retrouve sur la cartographie en (\bar{Q}, ρ), les deux régions d'état de charge moyen autour de 42^+ et 50^+ où le taux NEET est maximum. Le taux d'excitation par effet NEET augmente avec la densité. Pour qu'un plasma ait le même état de charge moyen à une densité plus élevée, sa température doit être plus importante. L'augmentation de la température fait croître la population moyenne des orbitales initiales \bar{N}_i de la couche $n=6$ et la probabilité d'un trou dans la couche $n=4$. Ainsi, le taux NEET étant proportionnel à la population

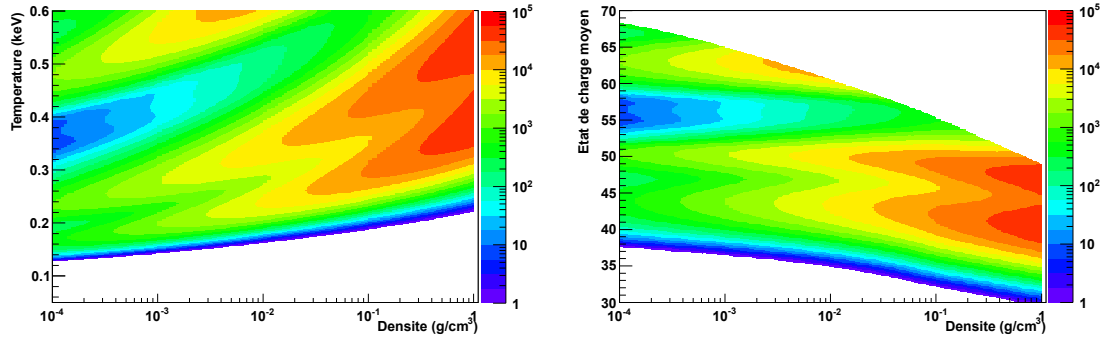


FIGURE 2.8 – Cartographie du taux NEET en (T_e, ρ) à gauche et en (\bar{Q}, ρ) à droite

moyenne initiale de l'orbitale ($\bar{\lambda}_{NEET} \propto \bar{N}_i[1 - \bar{P}_f]$), son taux est plus élevé.

Enfin, pour des états de charge de 63^+ , nous voyons apparaître une transition M1 résonante ($5s_{1/2}-4s_{1/2}$). Cependant, nous ne nous y intéresserons pas dans la suite car c'est un état de charge élevé difficilement accessible dans les plasmas produits par laser.

Dans la partie précédente, nous avons montré que les énergies moyennes des transitions atomiques sont différentes de celles calculées par la version initiale d'ISOMEX. La figure 2.9 présente la comparaison du calcul du taux NEET réalisé dans ce travail par rapport à l'ancienne version d'ISOMEX en fonction en a) de la température et en b) de l'état de charge moyen des atomes du plasma.

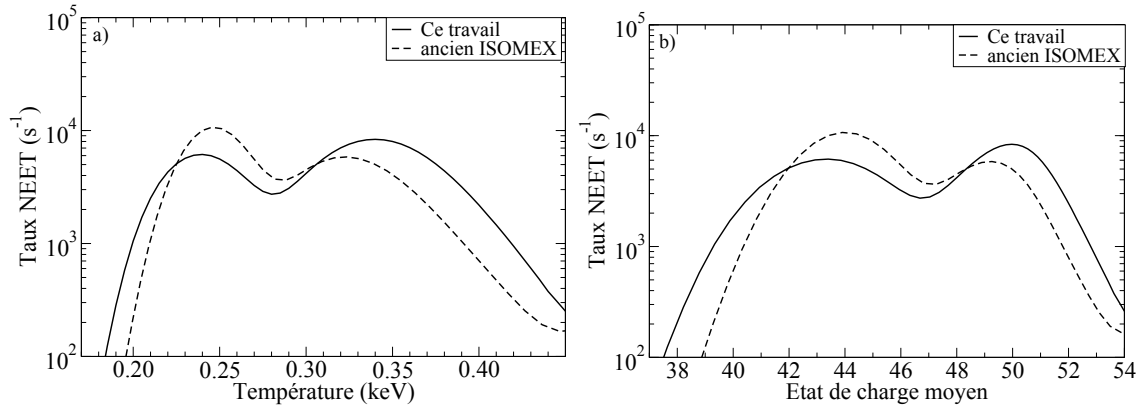


FIGURE 2.9 – Variation du taux NEET en fonction a) de la température du plasma et b) de l'état de charge moyen.

Des différences sont observées entre les résultats des deux calculs. Cependant, ces écarts ne sont pas très importants (de l'ordre d'un facteur 2) car la différence des énergies des transitions moyennes reste modeste (inférieure ou égale à 20 eV, même ordre de grandeur que σ_{corr}). Cependant, dans le cas d'autres noyaux où les transitions atomiques résonantes sont des transitions vers des couches profondes (par

exemple dans le cas des transitions vers la couche L ou K), les différences sont plus importantes (cf. l'exemple sur le chlore dans la partie 2.1.1.2).

2.1.3 Conclusion de la partie

Dans cette partie, nous avons présenté les résultats du calcul du taux d'excitation nucléaire réalisé par effet NEET sur le premier état excité du ^{201}Hg dans le modèle de l'atome-moyen avec élargissement gaussien. Un nouveau calcul de l'énergie de transition atomique moyenne est utilisé, une différence de la dizaine d'eV à la centaine d'eV par rapport à l'ancienne version d'ISOMEX peut être observée selon la transition atomique. Un meilleur accord est observé avec les transitions atomiques expérimentales comme nous l'avons illustré sur le chlore.

Le modèle AMG nous a permis de montrer que quatre transitions atomiques sont résonantes pour des états de charge moyens compris entre 42^+ et 50^+ . A 10^{-2} g/cm³, les taux NEET sont compris entre 10^3 et 10^4 excitations par seconde. Le modèle de l'atome-moyen avec élargissement gaussien nous a permis de calculer une cartographie du taux NEET dans une large gamme en température et densité. Nous avons pu observer que le taux NEET augmente avec la densité pour un même état de charge moyen. Le nouveau calcul des énergies des transitions atomiques moyennes induit une différence d'un facteur 2 sur le taux NEET par rapport à celui calculé par l'ancienne version d'ISOMEX.

Le calcul de l'effet NEET par le modèle AMG est cependant sujet à caution. En effet, nous utilisons une approche continue (l'approximation gaussienne) pour calculer un phénomène résonant dont le centroïde de la gaussienne est calculé par une énergie de transition atomique moyenne. Pour appréhender la pertinence de l'AMG pour un calcul de taux NEET, nous allons utiliser un code de physique atomique plus détaillé. L'utilisation de ce code sera limitée aux régions d'états de charge élevés. C'est pourquoi nous serons amenés à proposer un calcul moins exact mais permettant de traiter un bien plus grand nombre de configurations.

2.2 Comparaison avec un code de physique atomique détaillé

Le code de physique atomique utilisé est MCDF (Multi-Configuration Dirac Fock) développé par J.Bruneau [Bru84]. Ce code permet de calculer les énergies des niveaux obtenues par couplage des moments cinétiques électroniques. Dans le cas du ^{201}Hg , la comparaison avec l'AMG sur un calcul de taux NEET n'est pas réalisable à l'heure actuelle car nous ne disposons pas de l'expression de l'élément de matrice de couplage dans ce formalisme. La comparaison avec l'AMG sera alors effectuée sur le spectre radiatif d'émission spontanée de la transition E2 $6p_{1/2}-4p_{3/2}$. Comme nous l'avons vu dans la partie précédente, cette transition atomique résonne avec la transition nucléaire pour des états de charge moyen autour de 50^+ . Cependant, même si les états

de charge à calculer avec MCDF sont élevés (nous calculerons les états de charge 47^+ à 51^+), le nombre de configurations électroniques à calculer est trop important pour qu'un calcul sur l'ensemble de toutes les configurations soit réalisable. Une sélection des configurations électroniques les plus probables doit être réalisée. Les spectres radiatifs issus de l'AMG et de MCDF vont être comparés et nous déterminerons les états de charge pour lesquels l'approche continue de l'AMG est justifiée.

2.2.1 Principe d'un calcul MCDF

La méthode MCDF étant abondamment décrite dans la littérature [Gra80][Des89], nous ne nous attarderons pas à la décrire dans les détails. Le code MCDF est un code de physique atomique relativiste qui ne tient pas compte de l'environnement dans lequel est plongé l'atome. Il calcule les énergies des niveaux en prenant en compte le couplage des moments cinétiques individuels j (où $\vec{j} = \vec{l} + \vec{s}$ avec \vec{l} le moment cinétique orbital et \vec{s} le spin) des électrons entre eux : ce couplage est appelé couplage jj . Les fonctions d'onde totales du système, solutions de l'équation de Dirac-Fock, sont exprimées dans la base des moments cinétiques totaux J , de sa projection M_J et de la parité Π . La résolution de l'hamiltonien du système donne les énergies des niveaux pour chaque valeur de $J\Pi$ ainsi que les fonctions d'onde monoélectroniques des orbitales atomiques nlj . Les états propres du système sont un mélange des différentes configurations atomiques. A la fin du calcul, nous disposons de l'énergie et du taux d'émission spontanée de chaque raie² émise entre deux niveaux $J - J'$.

Un calcul en multi-configuration permet de coupler toutes les configurations relativistes (orbitales caractérisées par les nombres quantiques nlj) issues des configurations non relativistes (nl) initiales et finales, c'est l'interaction de configurations [BS00a] [Bau95]. Par exemple, pour une transition atomique $3p$ vers $2s$ issue de la configuration non-relativiste initiale $(1s)^2(2s)^1(3p)^2$, cinq configurations relativistes sont couplées (cf. Tableau 2.2).

	Configuration nl	Configurations nlj couplées
Initiale	$(1s)^2(2s)^1(3p)^2$	$(1s_{1/2})^2(2s_{1/2})^1(3p_{1/2})^2$
		$(1s_{1/2})^2(2s_{1/2})^1(3p_{1/2})^1(3p_{3/2})^1$
		$(1s_{1/2})^2(2s_{1/2})^1(3p_{3/2})^2$
Finale		$(1s_{1/2})^2(2s_{1/2})^2(3p_{1/2})^1$
		$(1s_{1/2})^2(2s_{1/2})^2(3p_{3/2})^1$

TABLEAU 2.2 – Principe d'un calcul en multi-configuration

Cependant, dans la suite, nous limiterons l'interaction de configurations au couplage de la configuration relativiste initiale et finale. Ceci permet de diminuer consi-

2. On appelle transition, un photon émis entre deux configurations et raie un photon émis entre deux niveaux $J-J'$.

dérablement le nombre de raies à calculer tout en gardant les raies les plus intenses [DP14].

La figure 2.10 présente une illustration d'une transition atomique dans les cas avec et sans couplage jj . Lorsque le couplage jj est pris en compte entre la configuration initiale et finale, la transition atomique entre l'orbitale initiale et l'orbitale finale est éclatée en un faisceau de transitions regroupant N raies.

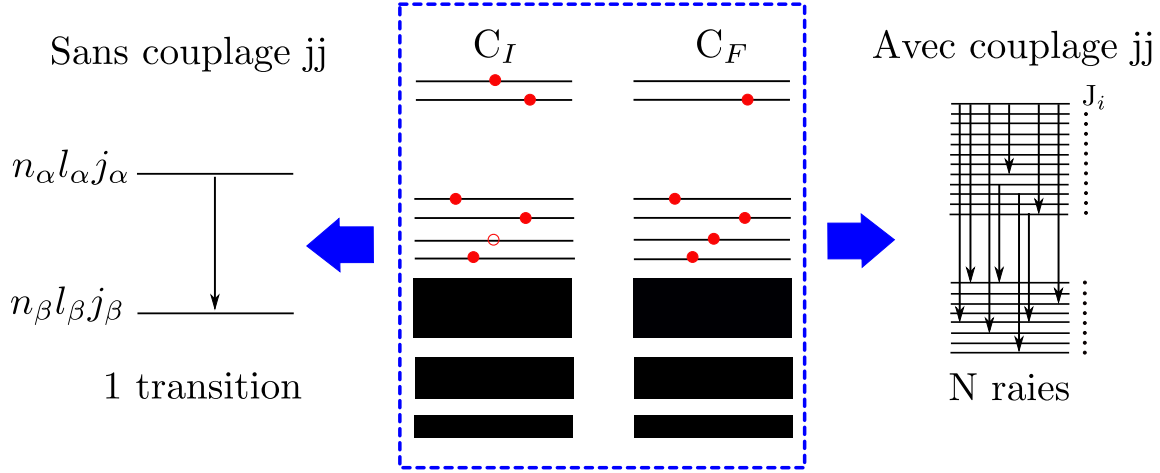


FIGURE 2.10 – Dans le cas sans couplage jj , une transition entre deux orbitales donne lieu à une transition. Si les moments cinétiques des électrons des configurations initiale et finale sont couplés entre eux, la transition est éclatée en un faisceau de transition.

2.2.2 Comparaison avec l'AMG sur un spectre radiatif

Dans cette partie, nous allons comparer le spectre radiatif calculé dans le modèle de l'AMG et par MCDF pour la transition E2 $6p_{1/2}-4p_{3/2}$. Le calcul d'atome-moyen est réalisé à une température de 316 eV et une densité de 10^{-2} g/cm^3 , donnant un état de charge moyen de $48,88^+$. Avec MCDF, les spectres de raies des états de charge compris entre 47^+ à 51^+ sont calculés (dans la littérature cette approche est appelée DTA "*Detailed Transition Array*").

2.2.2.1 Population des niveaux atomiques

A l'équilibre thermodynamique, la probabilité d'occupation des niveaux est déterminée à l'aide de la fonction de partition du système [Sal98][Diu89]. La probabilité d'occupation d'un niveau est calculée en utilisant la grande fonction de partition Z_{GC} . Ainsi, pour un niveau i d'énergie E_i appartenant à un état de charge Q , sa probabilité d'occupation s'écrit :

$$P_Z(E_i) = \frac{g_i e^{-\beta(E_i - \mu Q)}}{Z_{GC}} \quad (2.35)$$

où

$$Z_{GC} = \sum_Q Z_{GC}^Q = \sum_Q \sum_{j=1}^{N_Q} g_j e^{-\beta(E_j - \mu Q)} \quad (2.36)$$

avec $g_i = 2J_i + 1$ la dégénérescence du niveau i , E_i son énergie totale et $\beta = 1/kT$. Le nombre de niveaux à l'état de charge Q est noté N_Q et le terme μ désigne le potentiel chimique issu du calcul de l'atome moyen, déterminé en assurant l'électroneutralité du système [Roz72] et Z_{GC}^Q est la fonction de partition de l'état de charge Q . Notons bien que l'utilisation de la grande fonction de partition implique que les probabilités des niveaux $P_Z(E_i)$ soient normalisées sur l'ensemble des états de charge. Ces probabilités incluent donc la probabilité d'existence de l'état de charge Q à la température T , $P(Q)$. En effet, elle peut être extraite en utilisant la grande fonction de partition de chaque état de charge :

$$P(Q) = \frac{Z_{GC}^Q}{Z_{GC}} \quad (2.37)$$

La figure 2.11 présente ainsi la fraction ionique (i.e, la probabilité de chaque état de charge) du plasma à une température de 316 eV et 10^{-2} g/cm³, celle-ci est calculée à partir de l'équation (2.37). On voit bien que la distribution des états de charge est centrée sur le 49⁺, état de charge correspondant à l'état de charge moyen du plasma ($\bar{Q}=48,88^+$).

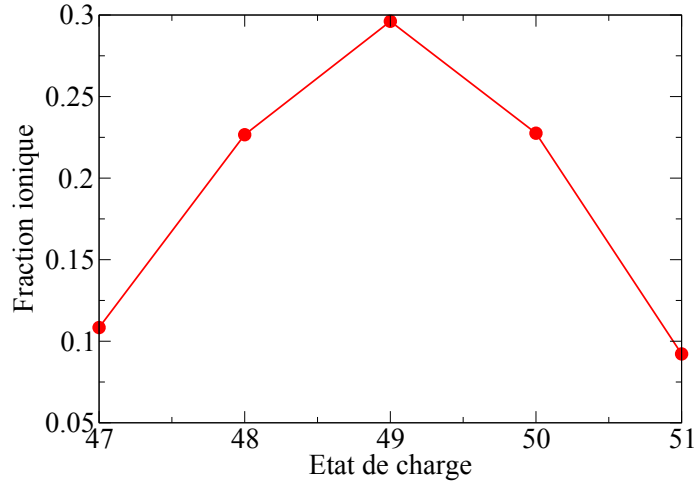


FIGURE 2.11 – Fraction ionique du plasma à la température de 316 eV à 10^{-2} g/cm³ utilisée pour pondérer les états de charge 47⁺ à 51⁺ des calculs MCDF.

Les probabilités d'occupation des orbitales issues du calcul d'atome moyen nous permettent de déterminer des contraintes sur leur population. Ces contraintes permettent de restreindre le nombre d'orbitales à prendre en compte dans le calcul

MCDF. Le tableau 2.3 liste les probabilités d'occupation et les populations moyennes des couches pour un plasma de 316 eV et une densité de 10^{-2} g/cm^3 .

Couche k	\overline{P}_k	\overline{N}_k
K	1	2
L	1	8
M	0,995	17,92
N	$8,6 \times 10^{-2}$	2,76
O	$3,6 \times 10^{-3}$	0,18
P	$7,6 \times 10^{-4}$	0,05
Q	$3,2 \times 10^{-4}$	0,03

TABLEAU 2.3 – Probabilités d'occupation et populations moyennes des couches issues du calcul d'atome moyen à une température de 316 eV et 10^{-2} g/cm^3 .

D'après les résultats du calcul de l'atome moyen, les couches K et L sont fermées tandis que la couche M est pleine à 99,5%. Plus le nombre quantique principal augmente, plus la probabilité d'occupation d'un électron sur la couche diminue. Ainsi, compte tenu des résultats présentés dans le tableau 2.3, la génération des configurations pour le calcul MCDF est réalisée avec les contraintes suivantes :

- Les couches K, L, M ($n=1,2,3$) sont fermées.
- Les électrons restant peuvent se déplacer sur les couches N, O et P ($n=4$ à $n=6$).
- Les couches supérieures à $n=6$ ne sont pas prises en compte.

Ces contraintes peuvent être discutées, notamment le choix de considérer la couche M fermée. Nous discuterons dans la prochaine partie de l'influence de ces approximations. Malgré ces contraintes, le nombre de configurations est encore trop grand (116 799 pour l'état de charge 47+) pour pouvoir toutes les calculer avec MCDF. Une sélection des configurations les plus probables est donc nécessaire.

2.2.2.2 Sélection des configurations les plus probables

Le très grand nombre de configurations des atomes présents dans le plasma rend prohibitif un calcul MCDF de chaque configuration. Il faut donc trouver un critère permettant de sélectionner les configurations compte tenu de leur probabilité de peuplement dans le plasma. L'atome moyen nous permet d'obtenir la probabilité moyenne d'occupation des orbitales atomiques \overline{P}_k à une température et une densité donnée. Ainsi, la probabilité d'existence d'une configuration dans le plasma peut être estimée par une loi binomiale (approximation des électrons indépendants, cf. annexe

C) en faisant intervenir les probabilités moyennes d'occupation \bar{P}_k du calcul d'atome moyen :

$$P_B(C) = \frac{1}{A} \prod_{k=1}^{k_{max}} \binom{g_k}{n_k} \bar{P}_k^{n_k} (1 - \bar{P}_k)^{g_k - n_k} \quad (2.38)$$

où $P_B(C)$ est la probabilité binomiale de la configuration C , les termes n_k et g_k sont respectivement la population et la dégénérescence de l'orbitale k , k_{max} désigne la dernière orbitale liée considérée et A est la constante de normalisation.

Pour chaque état de charge, toutes les configurations possibles sont générées compte tenu des contraintes citées précédemment et leur probabilité d'occurrence est calculée à l'aide de la probabilité binomiale (2.38). Les configurations sont ensuite classées par ordre décroissant de probabilité. Les configurations sont indicées n , allant de 1 (la configuration la plus probable) à N le nombre total de configurations. Le but est de dégager les configurations les plus pertinentes pour le calcul de la fonction de partition. Pour cela, définissons la probabilité binomiale cumulée de la configuration C_i , $P_B^C(C_i)$ comme étant :

$$P_B^C(C_i) = \sum_{n=1}^i P_B(C_n) \quad (2.39)$$

La probabilité d'une configuration à l'équilibre thermodynamique est calculée à l'aide de la fonction de partition Z_{GC} qui fait intervenir une somme de fonctions de Boltzmann sur toutes les configurations du système (cf. équation (2.36)). Cependant, pour le calcul de Z_{GC} , nous ne prenons en compte que les configurations d'indice $n < n_{max}$ avec n_{max} défini par $P_B^C(n_{max}) = 99\%$. La figure 2.12 illustre la méthode.

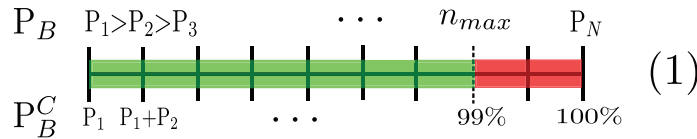


FIGURE 2.12 – Illustration de la méthode pour sélectionner les configurations d'intérêt pour le calcul de la fonction de partition Z_{GC} . En vert, les configurations calculées, en rouge les configurations rejetées.

Pour le calcul des énergies d'une transition donnée, on applique la même méthode de sélection des configurations que pour le calcul de la fonction de partition mais limitée seulement aux configurations initiales (c'est-à-dire qui autorisent cette transition). A partir de la liste de toutes les configurations (ensemble (1) sur la figure 2.13), on construit un sous-ensemble (noté (2)) des seules configurations initiales (trait bleu).

On construit alors une nouvelle probabilité cumulée P_B^C pour ce sous-ensemble et on considère l'ensemble des configurations jusqu'à ce que $P_B^C(n'_{max}) = 99\%$. On a ainsi autant de sous-ensembles qu'il y a de transitions. Le choix de la limite à 99% est

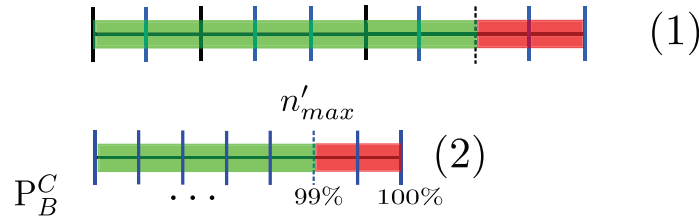


FIGURE 2.13 – Illustration de la méthode pour sélectionner les configurations à calculer pour une transition donnée. L'ensemble (1) est la liste de toutes les configurations. Le sous-ensemble (2) est la liste des configurations autorisant la transition.

arbitraire et nous vérifierons sa pertinence dans la prochaine partie. Le tableau 2.4 compare le nombre total de configurations au nombre de configurations considérées après cette sélection basée sur la probabilité binomiale cumulée. Par exemple, pour l'état de charge 47^+ on ne considère au final que 10% des configurations. Cette sélection des configurations, appliquée sur les calculs MCDF, a été vérifiée dans le travail de thèse de D. Denis-Petit [DP14].

Q	Calcul de Z_{GC}		Transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$	
	Total	Considérées	Total	Considérées
47	116799	9313	20024	2681
48	20325	2761	2895	825
49	2919	653	324	185
50	325	128	25	17
51	25	17	1	1

TABLEAU 2.4 – Comparaison du nombre total de configurations par rapport au nombre de configurations considérées pour le calcul de la fonction de partition et pour la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$.

2.2.2.3 Comparaison avec l'AMG

Sur la figure 2.14, on compare le spectre radiatif calculé avec MCDF pour la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ pour des états de charge allant de 47^+ à 51^+ avec le spectre de l'AMG. Comme nous le verrons dans le prochain chapitre, la largeur d'une raie est essentiellement due aux collisions entre les électrons libres et les ions et vaut de l'ordre de 10 meV pour un plasma à 10^{-2} g/cm³ (cf. Partie 2.3.1.2). Ainsi, un profil de raie lorentzien de largeur 10 meV est utilisé pour tracer le spectre de raies dans le cas du calcul MCDF.

La raie à 1,59 keV est la raie unique associée à l'état de charge 51^+ (cf. Tableau 2.4). Plus l'état de charge diminue, plus l'énergie des raies diminue car les électrons sont de moins en moins liés. Aucune raie n'est présente en-dessous de 1,44 keV car

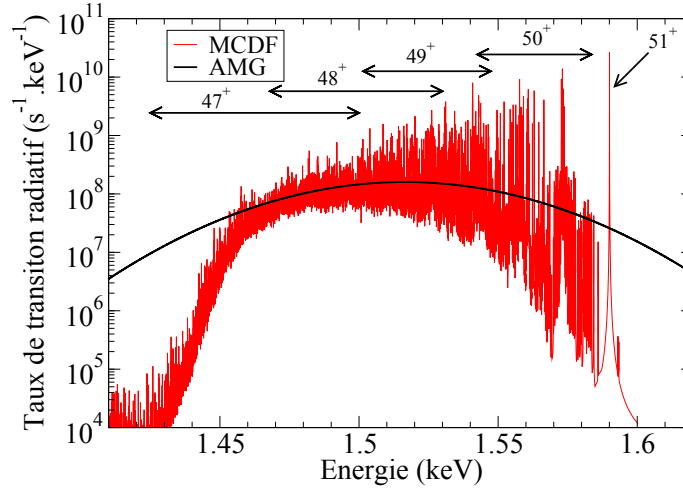


FIGURE 2.14 – Comparaison des spectres radiatifs de la transition E2 $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ issus du calcul MCDF (en rouge) et de l’AMG (en noir) à une température de 316 eV.

le spectre de raies de l’état de charge 46^+ n’a pas été réalisé du fait du nombre important de configurations à calculer ($\sim 3 \times 10^4$). La dispersion de la valeur du taux de transition calculé en multi-configuration augmente avec l’état de charge.

Dans la gamme en énergie [1,47-1,53 keV], la modélisation du spectre de raies par une gaussienne semble pertinente. En effet, cette région correspond à des raies issues des états de charge 47^+ et 48^+ où les faisceaux de transitions sont importants. Nous pouvons ainsi en déduire un espacement moyen entre deux raies dans la région où les résultats des deux calculs sont en bon accord. Le tableau 2.5 reporte le nombre de raies ainsi que leur écart moyen en énergie ($\overline{\Delta E_c}$) pour les différents états de charge.

Q	N _{raies}	$\overline{\Delta E_c}$ (eV)	Approx. Gauss.
47	11 796 449	8×10^{-6}	✓
48	853 651	$7,7 \times 10^{-5}$	✓
49	14 323	$3,4 \times 10^{-3}$	✓
50	157	$2,2 \times 10^{-1}$	×

TABLEAU 2.5 – Nombre de raies et écart en énergie moyen entre deux raies pour les différents états de charge.

La figure 2.15 représente le spectre de raies de l’état de charge 47^+ . La largeur du groupement de raies du 47^+ est de l’ordre de 90 eV donnant ainsi un écartement moyen entre deux raies de l’ordre de 8×10^{-6} eV, bien inférieur à la largeur individuelle de chaque raie (10 meV dans ce cas). Ainsi, si la largeur individuelle de chaque raie est supérieure à l’espacement moyen entre deux raies alors le calcul AMG est pertinent. D’après le tableau 2.5, cette condition est vérifiée jusqu’à l’état de charge 49^+ .

Pour la région en énergie supérieure à 1,53 keV de la figure 2.14, on observe un

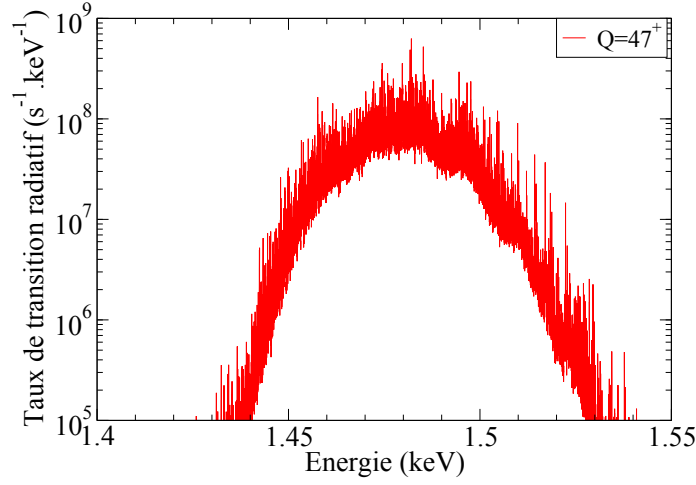


FIGURE 2.15 – Spectre de raies de l'état de charge 47^+ .

écart important entre les résultats des deux calculs. Dans cette région, les faisceaux de raies sont moins importants car les états de charge présents sont plus élevés (de 50^+ à 51^+). Par exemple, l'écartement moyen entre deux raies est de 0,2 eV pour les ions d'état de charge 50^+ , valeur supérieure à la largeur des raies.

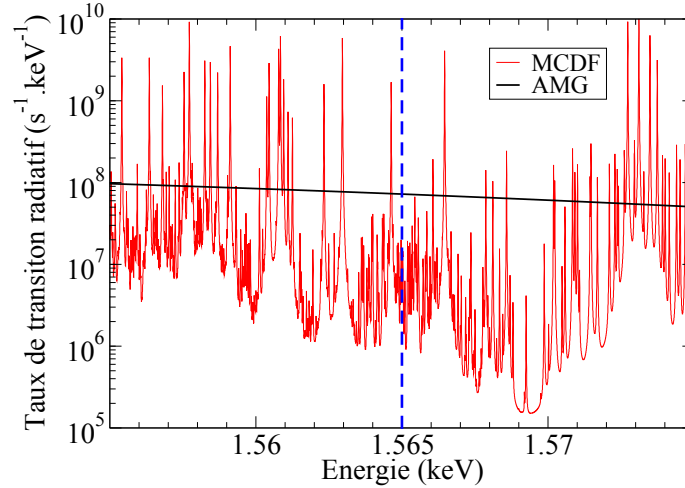


FIGURE 2.16 – Zoom de la figure 2.14 sur la région centrée sur 1,565 keV pour la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$.

La figure 2.16 montre un zoom de la figure 2.14 dans la région centrée sur 1,565 keV, intéressante pour l'effet NEET. Les fluctuations du taux radiatif autour de l'énergie de la transition nucléaire sont importantes. Le nombre de raies est élevé entre 1,555 et 1,575 keV mais reste insuffisant pour avoir une approche continue du taux de transition. D'après le résultat du calcul MCDF, une raie dominante apparaît à moins de 1 eV de la transition nucléaire. Cependant, l'incertitude sur les énergies

des raies du calcul MCDF est de quelques eV [DP14]. Les fluctuations sur le taux NEET dans cette région sont donc importantes. L'approche continue de l'AMG a tendance à surestimer en moyenne les taux d'excitation dans cette région.

Nous avons vu précédemment que les régions où le taux NEET étaient le plus important se situaient autour des états de charge moyen 42^+ et 50^+ . Au vu des variations du nombre de raies en fonction de l'état de charge du tableau 2.5, le nombre de raies pour des états de charge inférieurs à 47^+ doit être gigantesque. Un calcul en multi-configuration dans cette région est totalement rédhibitoire. Cependant, l'écart entre deux raies doit être très faible comparé à la largeur d'une raie. Ainsi, on s'attend à ce que l'approximation de l'AMG soit valide pour des états de charge inférieurs à 47^+ .

2.2.3 Conclusion de la partie

Dans cette partie, nous avons utilisé le code MCDF pour vérifier la pertinence de l'approximation gaussienne de l'AMG. Nous avons comparé les deux modèles sur le spectre radiatif de la transition atomique $6p_{1/2}-4p_{3/2}$, transition résonante pour l'effet NEET pour des états de charge de 50^+ . La température du plasma est prise à 316 eV de sorte à obtenir un état de charge moyen proche de 49^+ ($\bar{Q} \approx 48,88$) à 10^{-2} g/cm³. Le spectre de raies des états de charge compris entre 47^+ à 51^+ a été ainsi calculé. Le calcul de la fonction de partition grand canonique à la température de 316 eV a permis de calculer la probabilité que la raie soit présente dans le plasma. La comparaison des spectres a montré que l'approximation gaussienne est pertinente lorsque l'écart en énergie entre deux raies est inférieur à la largeur individuelle de chaque raie. Ce critère n'est vérifié que pour les états de charge inférieurs à 49^+ sur le calcul d'un spectre radiatif.

Malgré la bonne précision des calculs des énergies des raies avec MCDF, l'application de cette méthode pour un calcul de taux NEET est très peu réaliste dans le cas du ^{201}Hg . Les temps de calcul peuvent en effet être très longs : pour l'état de charge 47^+ , certaines configurations nécessitent jusqu'à 200 heures sur une station de travail classique. Les états de charge plus faibles sont ainsi hors de portée avec les ordinateurs actuels. De plus, les calculs MCDF sont généralement précis à quelques eV près [DP14], rendant illusoire un calcul de taux NEET exact, il ne peut alors qu'être borné. C'est pour cela que nous avons développé un modèle intermédiaire entre l'AMG et MCDF qui permet d'évaluer les énergies des configurations réelles à partir du résultat du calcul de l'atome moyen. Cette méthode va nous permettre de calculer le taux NEET pour des états de charge en-deçà de 47^+ et de déterminer les fluctuations autour du taux NEET calculé par l'AMG.

2.3 Vers une approche intermédiaire : le code ADAM

Nous avons vu précédemment que les calculs MCDF pour des états de charge inférieurs à 47^+ sont difficilement réalisables dans le cas du ^{201}Hg . De plus, quelle que soit la méthode de calcul de physique atomique utilisée, l'incertitude sur les énergies des transitions rend illusoire un calcul exact de taux NEET. C'est pour cela que le code ADAM (Au-Delà de l'Atome Moyen) a été développé. Le calcul des énergies des configurations électroniques (appelée dans la littérature calcul DCA pour "Detailed Configuration Accounting") est réalisé en utilisant les résultats du calcul d'atome moyen : c'est l'éclatement de configurations autour de l'atome moyen. Cette méthode, bien que moins exacte qu'un calcul en multi-configuration, permet de calculer le taux NEET dans une large gamme en température et densité et nous permettra de calculer les fluctuations sur le taux dues aux incertitudes sur les énergies des transitions atomiques.

Nous commencerons par détailler le principe d'un calcul en éclatement de configurations autour de l'atome moyen. Ensuite nous détaillerons les différentes approximations qui sont faites pour la génération des configurations. On présentera alors des comparaisons entre ADAM, l'AMG et MCDF sur le spectre radiatif de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$. Le taux NEET calculé avec ADAM sera ensuite présenté et comparé avec les résultats de l'AMG. Enfin, la démarche qui permet de quantifier les fluctuations sur le taux NEET sera présentée.

2.3.1 Principe

2.3.1.1 L'éclatement de configurations autour de l'atome moyen

L'éclatement en configurations autour de l'atome moyen consiste à calculer les énergies des configurations en utilisant les énergies moyennes de l'interaction électron-noyau \bar{U}_k et de l'interaction électron-électron $\bar{V}_{kk'}$ issues du calcul auto-cohérent de l'atome moyen. L'énergie d'une configuration est alors calculée via une réduction de l'équation (2.3) à l'atome moyen :

$$E(C) = \sum_k N_k \bar{U}_k + \frac{1}{2} \sum_k \sum_{k'} N_k (N_{k'} - \delta_{kk'}) \bar{V}_{kk'} \quad (2.40)$$

où N_k est le nombre d'électrons dans l'orbitale k .

Cette approximation consiste à considérer que le potentiel des différentes configurations électroniques est peu différent de celui de l'atome moyen. Les calculs des éléments de matrice NEET et radiatif sont réalisés en utilisant les fonctions d'onde monoélectroniques moyennes $\bar{\psi}_k$. Ces approximations permettent de réduire considérablement les temps de calcul par rapport à MCDF car elles évitent de calculer un potentiel optimisé pour chaque configuration. Ceci se fait au détriment de l'auto-cohérence comme définie en 2.1.1.1. L'énergie d'une transition atomique de l'orbitale

α vers l'orbitale β est calculée en faisant la différence des énergies de la configuration initiale C_i et de la configuration finale C_f :

$$h\nu_{\alpha \rightarrow \beta} = E(C_i) - E(C_f) \quad (2.41)$$

2.3.1.2 Expression du taux NEET et du taux radiatif

Taux NEET

Dans le code ADAM, le taux NEET est calculé d'après l'expression (2.21) que nous rappelons :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET} = \sum_{C_i} P(C_i) \frac{\Gamma_\alpha}{\hbar} N_\alpha \left(1 - \frac{N_\beta}{g_\beta}\right) \left(1 + \frac{\Gamma_\beta}{\Gamma_\alpha}\right) \frac{|W_{\alpha\beta}|^2}{\delta^2 + \frac{(\Gamma_\alpha + \Gamma_\beta)^2}{4}} \quad (2.42)$$

où $P(C_i)$ est la probabilité de la configuration initiale. Dans la suite, la probabilité des configurations est issue du calcul de la grande fonction de partition, comme définie dans la partie 2.2.2.1, mais appliquée aux configurations. Les termes Γ_α et Γ_β sont respectivement les largeurs atomiques de l'orbitale initiale et de l'orbitale finale de la transition. N_α et N_β symbolisent respectivement les populations des orbitales initiale et finale. Enfin, $|W_{\alpha\beta}|^2$ est l'élément de matrice de couplage atome-noyau défini dans le chapitre 1.

Ce code ADAM ne calculant pas un taux NEET moyen comme avec l'AMG, il faut prendre en compte les valeurs des largeurs atomiques Γ_α et Γ_β . Nous allons montrer que ces largeurs ont une contribution collisionnelle généralement dominante dans nos plasmas d'intérêt. Ces largeurs sont estimées par la relation de Dimitrijevic et Konjevic [Dim80, Dim86, Dim87] :

$$\Gamma_{nl} = N_e \frac{4\pi}{3} \frac{\hbar^3}{m_e^{3/2}} \sqrt{\frac{2\pi}{3}} \sqrt{\frac{1}{k_B T_e}} \left(0.9 - \frac{1.1}{Q}\right) \left(\frac{3n}{2Q}\right)^2 (n^2 - l^2 - l - 1) \quad (2.43)$$

où N_e est la densité électronique du plasma, T_e sa température et Q l'état de charge de l'ion. Cependant, cette relation n'est valable que pour des orbitales non relativistes nl . Or la section efficace de collision atomique est proportionnelle au premier ordre à la surface de la fonction d'onde ($\propto r^2$). Ainsi, si on suppose que le rayon d'une orbitale relativiste nlj est peu différent de celui de l'orbitale non relativiste nl , alors la relation (2.43) peut être appliquée en la corrigeant du rapport des dégénérescences des orbitales dues au nombre quantique supplémentaire j :

$$\Gamma_{nlj} = \Gamma_{nl} \frac{g_{nlj}}{g_{nl}} \quad (2.44)$$

La largeur radiative est liée à la durée de vie de l'état atomique excité. Elle s'exprime à partir du taux d'émission spontanée en considérant toutes les transitions d'une orbitale initiale α vers toutes les orbitales finales possibles [Dau93]. Elle s'exprime ainsi :

$$\Gamma_{rad} = \sum_{\beta} \hbar A_{\alpha\beta} \quad (2.45)$$

où $A_{\alpha\beta}$ est le taux d'émission spontanée à une particule d'une transition entre l'orbitale α vers l'orbitale β [Gra74].

Par exemple, la largeur collisionnelle des orbitales $6p_{1/2}$ et $4p_{3/2}$, pour un ion de mercure d'état de charge 49^+ dans un plasma à 316 eV à 10^{-2} g/cm³ est respectivement de 7 meV et de 2 meV. Les taux radiatifs des transitions E1 de la couche P vers la couche N sont de l'ordre de 10^{12} s⁻¹. La largeur radiative est alors de l'ordre de 0,6 meV et est bien négligeable devant la largeur collisionnelle.

Spectre radiatif

Les spectres radiatifs qui seront considérés dans la suite sont calculés par la relation suivante :

$$\lambda_{\alpha \rightarrow \beta}^{RAD}(h\nu) = \sum_{C_i} P(C_i) A_{\alpha\beta} N_{\alpha} \left(1 - \frac{N_{\beta}}{g_{\beta}}\right) \Psi_{\alpha-\beta}(h\nu) \quad (2.46)$$

où N_{α} , N_{β} sont respectivement les populations électroniques des orbitales α et β de la configuration initiale C_i , g_{β} est la dégénérescence de l'orbitale β , le terme $A_{\alpha\beta}$ est le taux de transition à une particule [Gra74] et $\Psi_{\alpha-\beta}(h\nu)$ le profil de la transition.

2.3.1.3 Génération des configurations

Le problème de la génération des configurations a été rencontré dans la partie 2.2. Une sélection des configurations les plus probables a été réalisée en calculant les probabilités des configurations à l'aide d'une loi binomiale. Dans ADAM, la génération et la sélection des configurations les plus probables sont améliorées. Le modèle de l'atome moyen permet de décrire le plasma par une configuration moyenne dont la variance des populations de chaque orbitale peut être calculée, dans le cas d'un modèle de particules indépendantes, par une variance binomiale (cf. annexe C) :

$$\sigma_k^2 = g_k \bar{P}_k (1 - \bar{P}_k) \quad (2.47)$$

où \bar{P}_k est la probabilité moyenne d'occupation de l'orbitale k issue du calcul d'atome moyen et g_k la dégénérescence de cette orbitale. Les configurations réelles qui seront prises en compte pour le calcul ont leur population N_k comprise dans un intervalle autour de la population moyenne :

$$N_k^{min} \leq N_k \leq N_k^{max} \quad (2.48)$$

où

$$\begin{aligned} N_k^{min} &= \bar{N}_k - m\sigma_k^2 \\ N_k^{max} &= \bar{N}_k + m\sigma_k^2 \end{aligned} \quad (2.49)$$

avec la variable m généralement prise entre 1 et 5 et σ_k^2 est la variance binomiale de l'orbitale k . Les valeurs extrêmes N_k^{min} et N_k^{max} sont toujours arrondies respectivement à l'entier inférieur et supérieur. Dans ADAM, une orbitale k donnée, de dégénérescence g_k , peut être définie comme étant de quatre types différents, dépendant du nombre moyen d'électrons \bar{N}_k présents sur l'orbitale :

- pleine (p) : si $\bar{N}_k = g_k$ ou si $g_k - \bar{N}_k < L_f$ où L_f est généralement pris entre 10^{-3} et 10^{-8} .
- presque pleine (pqp) : si le nombre minimum d'électrons autorisé est supérieur au nombre maximum de trous soit $N_k^{min} > g_k - N_k^{max}$
- ouverte (o) : si $N_k^{min} = 0$ et $N_k^{max} = g_k$
- presque vide (pqv) : si le nombre maximum d'électrons autorisé est inférieur au nombre minimum de trous soit $N_k^{max} < g_k - N_k^{min}$

L'ensemble des orbitales presque pleines et presque vides possède respectivement un nombre maximum de trous tr^{max} et un nombre maximum d'électrons ne^{max} définis comme :

$$\begin{aligned} tr^{max} &= \sum_{k \in pqp} (g_k - N_k^{min}) \\ ne^{max} &= \sum_{k \in pqv} N_k^{max} \end{aligned} \tag{2.50}$$

La détermination du type d'orbitale est généralement faite de façon automatique, compte tenu du résultat de l'atome moyen. Cependant, le code offre la possibilité à l'utilisateur de les définir lui-même pour calculer des configurations particulières. Dans la partie 2.3.2, nous étudierons l'effet du choix des paramètres m et L_f sur les spectres radiatifs et sur les valeurs du taux NEET.

On détermine ainsi toutes les configurations qui respectent les critères précédents pour des états de charge compris dans un intervalle fini, centrées sur l'état de charge moyen :

$$\bar{Q} - n_Q \leq Q \leq \bar{Q} + n_Q \tag{2.51}$$

où n_Q est la valeur de l'éclatement en charge, généralement pris à 3.

Une fois que les configurations sont générées, une sélection des configurations les plus probables est réalisée à l'aide du critère faisant intervenir les probabilités binomiales comme définies dans la section précédente (équation 2.38). Normalement, pour chaque transition, il faut construire un sous-ensemble des seules configurations autorisant la transition. La construction de ces sous-ensembles peut devenir très longue si le nombre de configurations est important. Une procédure numérique a

été mise en place pour réduire les temps de calcul. Elle est appliquée à toutes les transitions de chaque état de charge.

Posons $P_B(C_i)$ la probabilité binomiale de la configuration C_i calculée par (2.38). Toutes les configurations sont classées par ordre décroissant de probabilité. Naturellement, il vient :

$$\sum_{i=1}^{N_{\text{conf}}} P_B(C_i) = 1 \quad (2.52)$$

où N_{conf} est l'ensemble des configurations. On pose maintenant α_i tel que :

$$\alpha_i = \begin{cases} 1 & \text{si la configuration autorise la transition} \\ 0 & \text{sinon} \end{cases} \quad (2.53)$$

La configuration i sera sélectionnée si la somme des probabilités des configurations jusqu'à alors sélectionnées est inférieure à $\gamma\%$ de la probabilité totale des configurations autorisant la transition :

$$\sum_{i=1}^x \alpha_i P_B(C_i) \leq \gamma \sum_{i=1}^{N_{\text{conf}}} \alpha_i P_B(C_i) \quad (2.54)$$

où x est le numéro de la dernière configuration respectant le critère précédent, numéro qui nous est inconnu. La deuxième somme peut être séparée en deux sous-sommes :

$$\sum_{i=1}^x \alpha_i P_B(C_i) \leq \gamma \left(\sum_{i=1}^x \alpha_i P_B(C_i) + \sum_{i=x+1}^{N_{\text{conf}}} \alpha_i P_B(C_i) \right) \quad (2.55)$$

Il vient :

$$(1 - \gamma) \sum_{i=1}^x \alpha_i P_B(C_i) \leq \gamma \sum_{i=x+1}^{N_{\text{conf}}} \alpha_i P_B(C_i) \quad (2.56)$$

Par définition des α_i , $\alpha_i \leq 1$ d'où :

$$\sum_{i=x+1}^{N_{\text{conf}}} \alpha_i P_B(C_i) \leq \sum_{i=x+1}^{N_{\text{conf}}} P_B(C_i) \quad (2.57)$$

alors l'inégalité (2.56) devient :

$$(1 - \gamma) \sum_{i=1}^x \alpha_i P_B(C_i) \leq \gamma \sum_{i=x+1}^{N_{\text{conf}}} P_B(C_i) \quad (2.58)$$

soit

$$(1 - \gamma) \sum_{i=1}^x \alpha_i P_B(C_i) \leq \gamma \left(1 - \sum_{i=1}^x P_B(C_i) \right) \quad (2.59)$$

Ainsi, pour une transition donnée, on vérifie l'inégalité en faisant croître la valeur de x . Dès que l'inégalité n'est plus vérifiée, le calcul de cette transition est arrêté. Cette méthode permet d'éviter le parcours de toutes les configurations pour construire les sous-ensembles des configurations autorisant la transition.

2.3.2 Étude des approximations

Dans cette section, les différentes approximations et les critères de sélection des configurations vont être étudiés et discutés à partir d'un spectre radiatif. Le but est d'identifier un jeu de paramètres optimal pour calculer un taux NEET le plus "précis" possible sans que les temps de calculs soient rédhibitoires. Les caractéristiques de départ du calcul ADAM sont les suivantes :

- Température (T_e) : 316 eV
- Densité (ρ) : 10^{-2} g/cm³
- État de charge moyen (\overline{Q}) : $48,88^+$
- Transition E2 : $6p_{1/2}-4p_{3/2}$
- Dispersion autour des populations moyennes : $\pm 3\sigma$
- Éclatement en charge pris à $\overline{Q} \pm 2$ pour limiter le temps de calcul
- Critère de sélection des configurations : 99% de la probabilité binomiale cumulée pour le calcul de la fonction de partition et pour la transition

2.3.2.1 Détermination des configurations les plus probables

Comme présentée dans la partie précédente (paragraphe 2.2.2.2), la sélection des configurations les plus probables est réalisée à l'aide d'une estimation de la probabilité binomiale des configurations (2.60) en utilisant les probabilités d'occupation \overline{P}_k issues du calcul de l'atome moyen :

$$P_B(C) = \frac{1}{A} \prod_{k=1}^{N_{orb}} \binom{g_k}{n_k} \overline{P}_k^{n_k} (1 - \overline{P}_k)^{g_k - n_k} \quad (2.60)$$

Pour vérifier la validité d'une telle sélection, il faut comparer la probabilité binomiale $P_B(C)$ et la probabilité $P_Z(C)$ issue du calcul de la fonction de partition. Dans cet exemple, la fonction de partition peut être calculée en sommant sur toutes les configurations. La figure 2.17 présente l'évolution du rapport $P_B(C)/P_Z(C)$ en fonction de la probabilité $P_Z(C)$. Les configurations pour lesquelles le rapport des deux probabilités est le plus proche de 1 sont celles appartenant à l'état de charge 49^+ , état de charge proche de l'état de charge moyen ($\overline{Q} = 48,88$). Lorsqu'on s'éloigne de l'état

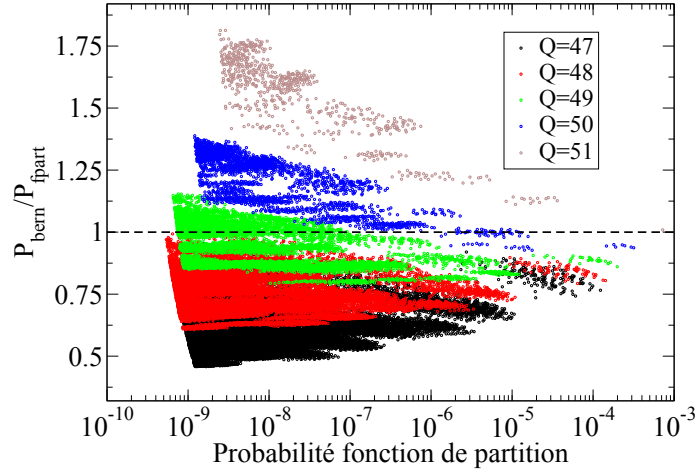


FIGURE 2.17 – Évolution du rapport de la probabilité binomiale $P_B(C)$ sur la probabilité issue de la fonction de partition $P_Z(C)$ en fonction de la probabilité $P_Z(C)$ pour les états de charge 47^+ au 51^+ .

de charge moyen, le rapport augmente jusqu'à un facteur 2 mais seulement pour les configurations où la probabilité $P_Z(C)$ est faible (inférieure à 10^{-7}). La probabilité binomiale nous donne donc une bonne approximation de la probabilité de la configuration pour réaliser la sélection des configurations les plus probables. Rappelons que la probabilité binomiale n'est utilisée que pour la sélection des configurations.

2.3.2.2 Effet de la non diagonalisation de l'hamiltonien pour chaque configuration

L'avantage principal de réaliser l'éclatement en configurations à partir des résultats de l'atome moyen est d'éviter la résolution de l'équation de Dirac pour chaque configuration. Les calculs ADAM sont ainsi beaucoup plus rapides. Afin de déterminer l'erreur introduite par cette approche, nous allons comparer le spectre radiatif de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ issu du code ADAM à celui où l'hamiltonien de chaque configuration a été calculé. L'énergie totale de la configuration est déterminée par MCDF dans une option où le couplage des moments cinétiques est inhibé (cette méthode sera appelée CNFM dans la suite).

Dans ADAM, la déclaration du type des orbitales est réalisée manuellement avec les caractéristiques définies dans la partie 2.3.2. En CNFM, les mêmes configurations sont utilisées et leur probabilité est issue du calcul de la fonction de partition grand canonique à la température de 316 eV. La figure 2.18 représente le spectre radiatif de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ calculé par les deux approches. Les deux spectres sont très semblables à un décalage en énergie près (≈ 5 eV). Ce décalage est dû à la prise en compte de l'interaction de Breit dans MCDF qui apporte une correction à la répulsion Coulombienne entre deux électrons via la prise en compte de l'échange d'un photon virtuel [Man71]. La figure 2.19 représente la comparaison des fonctions

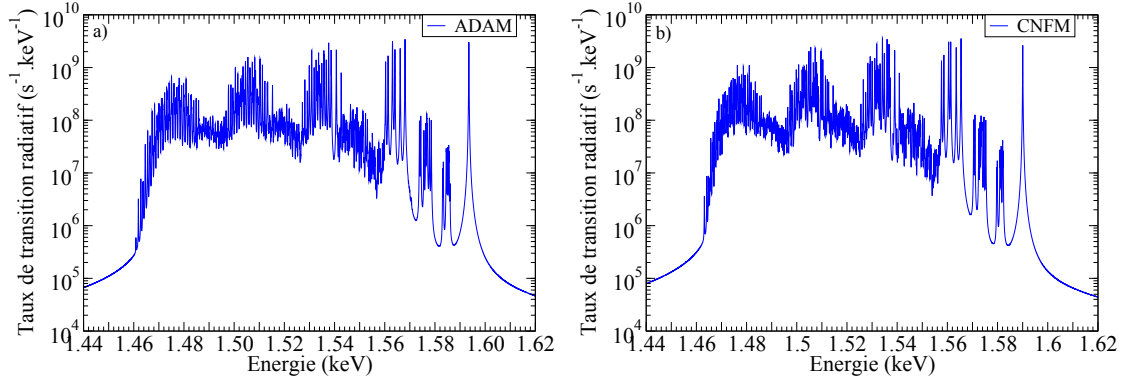


FIGURE 2.18 – Comparaison d’un calcul ADAM et d’un calcul en CNFM pour la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$.

d’onde moyennes et des fonctions d’onde d’une configuration des états de charge 47^+ et 51^+ issues du calcul CNFM pour les orbitales $4p_{3/2}$ (figure a) et $6p_{1/2}$ (figure b). Les fonctions d’onde moyennes sont identiques aux fonctions d’onde issues des calculs CNFM. Le calcul des éléments de matrice ne sera ainsi pas affecté par l’utilisation des fonctions d’onde moyennes dans ADAM. En résumé, les différences entre les deux

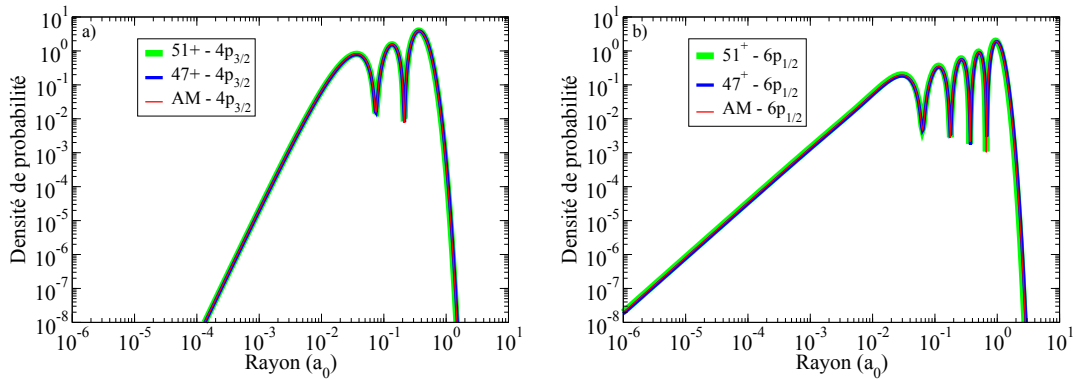


FIGURE 2.19 – Comparaison des fonctions d’onde issues du calcul de l’atome moyen et celles calculées en CNFM pour une configuration donnée des états de charge 47^+ et 51^+ pour les orbitales $4p_{3/2}$ en a) et $6p_{1/2}$ en b). Le terme a_0 désigne le rayon de Bohr ($a_0 = 0,53 \text{ \AA}$).

calculs sont minimales. Cependant, le temps de calcul nécessaire est de deux à trois heures en CNFM sur un cluster de 80 processeurs comparé à moins de dix minutes pour ADAM sur une station de travail normale. Ce code ouvre donc de nouvelles perspectives pour des calculs de taux NEET pour différents couples (ρ, T) du plasma.

2.3.2.3 Effet de l'ouverture de la couche M

Jusqu'ici, les spectres radiatifs à 316 eV ont été calculés avec les couches K, L et M pleines correspondant à 28 électrons bloqués (ce qui correspond à un état de charge maximum de 52^+). Cependant, lorsque la température augmente et que l'état de charge moyen se rapproche de 52^+ , la probabilité que des lacunes apparaissent dans la couche M augmente. Le tableau 2.6 présente les populations moyennes des orbitales de la couche M à 316 eV issues du calcul d'atome moyen ainsi que les populations électroniques minimales et maximales (arrondies respectivement à l'entier inférieur et supérieur) calculées par (2.48). Le type d'orbitale est reporté selon la valeur de L_f choisie (paragraphe 2.3.1.3).

Orbitale	g	\bar{N}	N_{min}	N_{max}	$L_f=10^{-3}$	$L_f=10^{-8}$
$3s_{1/2}$	2	1,9996	1	2	p	pqp
$3p_{1/2}$	2	1,9992	1	2	p	pqp
$3p_{3/2}$	4	3,9933	3	4	pqp	pqp
$3d_{3/2}$	4	3,9755	3	4	pqp	pqp
$3d_{5/2}$	6	5,9499	5	6	pqp	pqp

TABLEAU 2.6 – Tableau représentant les populations moyennes de la couche M à 316 eV et 10^{-2} g/cm³. Les orbitales pleines sont représentées par la lettre p , les presque pleines par pqp . La lettre g représente la dégénérescence de l'orbitale.

Si les populations moyennes ne sont pas égales à la dégénérescence, des trous apparaissent dans la couche rajoutant ainsi un ou plusieurs électrons spectateurs : le nombre de configurations électroniques présentes dans le plasma augmente.

Par contre, selon la valeur de L_f (10^{-3} ou 10^{-8}) les couches $3s_{1/2}$ et $3p_{1/2}$ sont pleines ou non, autorisant ou pas une transition. Il est important que L_f soit le moins restrictif possible afin d'autoriser toutes les transitions vers toutes les orbitales ayant des populations moyennes différentes de la dégénérescence. Cependant, cela a une conséquence directe sur les temps de calcul car cela rajoute un ou plusieurs électrons mobiles sur les orbitales ouvertes. Par exemple, lorsque la couche M est fermée, le nombre de configurations pour un ion d'état de charge de 47^+ est de l'ordre de 10^5 . Lorsque la couche M est ouverte avec une valeur de L_f de 10^{-3} , le nombre de configurations est multiplié par 10. La figure 2.20 représente l'évolution du spectre radiatif d'une couche M fermée, à une couche M partiellement ouverte. Les spectres radiatifs de la figure 2.20 restent dominés par les transitions impliquant des configurations où la couche M est pleine. L'intégrale du spectre entre 1565 ± 10 eV donne des valeurs différentes de 0.07% selon que la couche M est ouverte ($L_f=10^{-3}$) ou fermée. Les transitions issues des configurations où des trous dans la couche M sont présents ont des probabilités plus faibles. Les changements sont donc seulement visibles dans les régions vides du spectre par exemple dans la région autour de 1,58 keV et au-delà de 1,6 keV. La différence entre les spectres ayant des valeurs de L_f

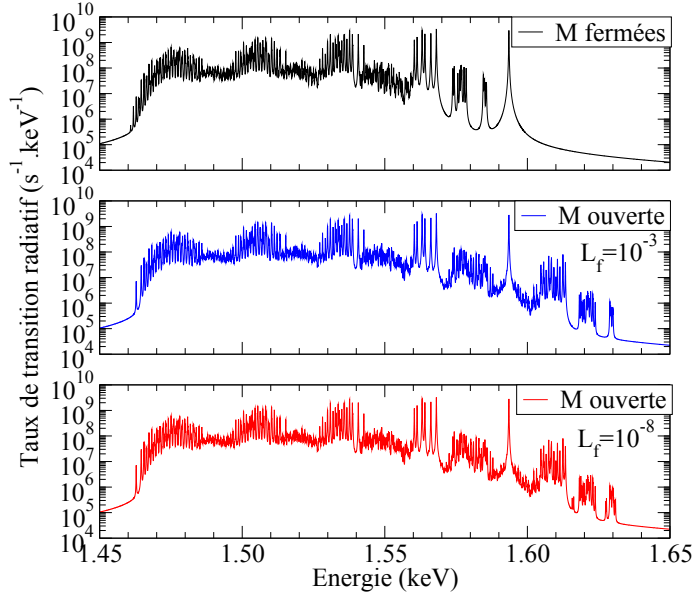


FIGURE 2.20 – Spectre radiatif de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ avec variation du degré d'ouverture de la couche M. En noir, couche M fermée. En bleu et rouge, ouverture de la couche M autorisée si la valeur de L_f est supérieure à 10^{-3} et 10^{-8} respectivement.

de 10^{-3} et 10^{-8} est extrêmement faible. Dans les prochaines parties, la valeur de L_f sera prise à 10^{-3} .

2.3.2.4 Variation du seuil pour la sélection des configurations

Les études précédentes ont été menées avec un seuil à 99% pour la sélection des configurations qui autorisent la transition. La figure 2.21 représente l'évolution du spectre de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ pour les conditions données en 2.3.2 pour quatre seuils différents fixés respectivement à 98,5%, 99%, 99,5% et 100%. Le choix de la transition et des états de charge permet de faire le calcul complet avec toutes les configurations dans ce cas particulier. La différence entre les spectres est minime. Les transitions que l'on ajoute en augmentant le seuil de sélection des configurations autorisant la transition au-delà de 99% ont des probabilités très faibles (inférieures à 10^{-7}) et augmentent les temps de calcul. Le tableau (2.7) représente le nombre de transitions selon la valeur du seuil choisie ainsi que l'intégrale du spectre entre $1,565 \pm 0,010$ keV normalisée par la valeur du spectre avec un seuil à 100%.

L'intégrale du spectre entre $1,565 \pm 0,010$ keV varie très peu pour des seuils compris entre 98,5% et 99,5%. En effet, elle ne change que de quelques dixièmes de pour cent par rapport au spectre avec un seuil à 100%. De plus, le nombre de transitions à calculer augmente avec le seuil : de 19% entre 98,5% et 99% et de 30% entre 99% et 99,5%. Ainsi, un seuil à 99% nous permet de ne sélectionner que 13% des transitions totales qui participent à 99,81% du spectre total.

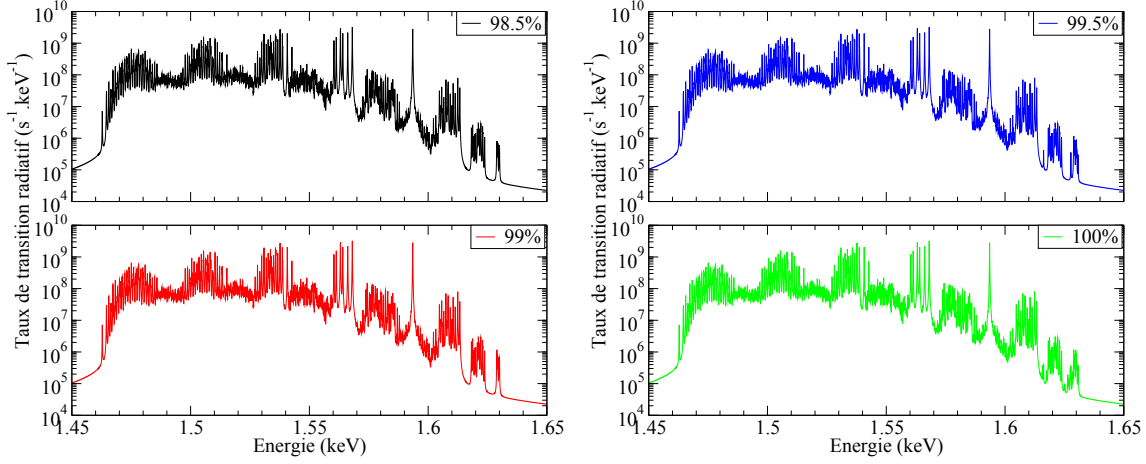


FIGURE 2.21 – Étude de l'effet du seuil de sélection des configurations autorisant la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ sur le spectre radiatif.

Seuil (%)	Nombre de transitions	Intégrale normalisée entre $1,565 \pm 0,010$ keV
98,5	27469	0,9974
99	32602	0,9981
99,5	43080	0,9989
100	330013	1

TABLEAU 2.7 – Variation du nombre de transitions calculées selon la valeur du seuil en probabilité binomiale pour la sélection des configurations. L'intégrale des spectres entre $1,565 \pm 0,010$ keV normalisée au spectre à un seuil à 100% est également reportée.

2.3.2.5 Variation du seuil en éclatement (3σ , 5σ)

Le dernier paramètre modifiable dans le code est l'écart-type des populations atomiques par rapport à la population moyenne (2.48). Cet écart-type est généralement pris à 3σ . La figure 2.22 compare les spectres radiatifs de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ pour des écarts-types des populations atomiques pris à 3σ et 5σ par rapport à la population moyenne. Sur le spectre radiatif l'effet est modeste (différence de 0,15% de l'intégrale du taux de transition radiatif) car les transitions qui sont rajoutées ont des probabilités très faibles. La différence est seulement visible dans la région "creuse" du spectre, c'est-à-dire pour des énergies supérieures à 1,6 keV. Cependant, l'effet de ce paramètre a un impact direct sur le temps de calcul en l'augmentant significativement car le nombre de configurations autorisées (Tableau 2.8) et le nombre de transitions à calculer augmentent. Une valeur à 3σ reste ainsi recommandée.

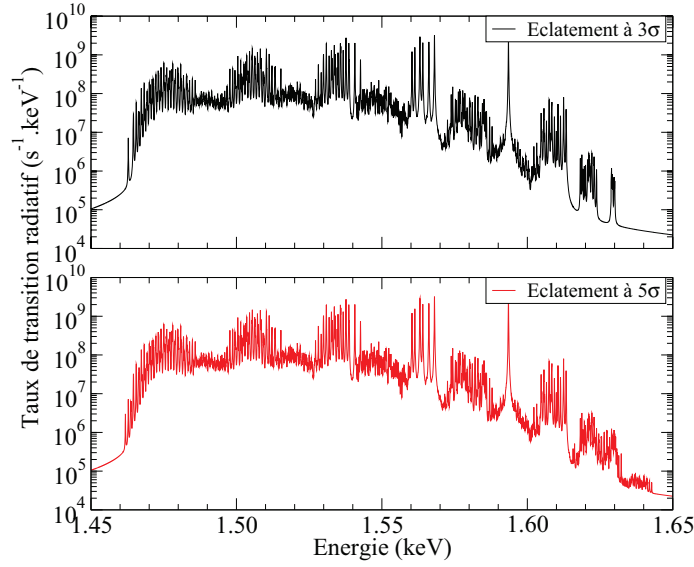


FIGURE 2.22 – Comparaison des spectres radiatifs pour des écarts-types de 3σ (en haut) et 5σ (en bas) autour de la population moyenne.

Q	$N_{conf}^{3\sigma}$	$N_{conf}^{5\sigma}$
47	1 337 605	7 338 335
48	320 249	2 011 938
49	62 801	467 908
50	9 085	89 614
51	1 101	13 549

TABLEAU 2.8 – Comparaison du nombre de configurations générées pour chaque état de charge en fonction de la valeur de l'écart-type des populations.

2.3.3 Comparaisons des différents modèles (AMG/ADAM/MCDF) sur un spectre radiatif

Dans cette partie nous allons comparer les trois modèles. Une première comparaison sera effectuée entre ADAM et l'AMG sur le spectre radiatif total E2 pour deux températures, 230 eV ($\bar{Q} \approx 42, 45^+$) et 350 eV ($\bar{Q} \approx 50, 36^+$). Enfin, la comparaison des trois modèles (AMG/ADAM/MCDF) sera faite sur la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ d'intérêt pour l'effet NEET dans le ^{201}Hg à une température de 316 eV et une densité de 10^{-2} g/cm^3 .

2.3.3.1 Comparaison entre ADAM et AMG

Maintenant que les différentes approximations ont été étudiées, nous allons comparer le spectre radiatif total des transitions E2 de ADAM avec l'AMG pour deux

températures 230 eV ($\bar{Q} \approx 42, 45^+$) et 350 eV ($\bar{Q} \approx 50, 36^+$) à 10^{-2} g/cm^3 . Le calcul du spectre radiatif est réalisé dans la gamme 1,4-1,8 keV et l'éclatement en charge d'ADAM est choisi à 3. La largeur des transitions est prise arbitrairement à 100 meV. La figure 2.23 compare les spectres radiatifs obtenus à 230 eV (figure a) et 350 eV (figure b).

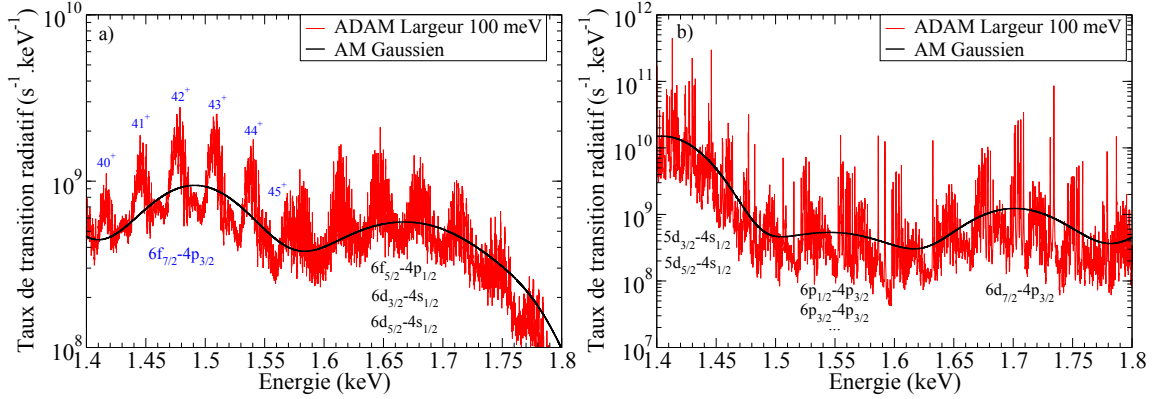


FIGURE 2.23 – Comparaison des spectres radiatifs E2 calculés avec l'AMG et ADAM pour deux températures de 230 eV (figure a) et 350 eV (figure b). La largeur des transitions est de 100 meV sur le spectre radiatif d'ADAM.

Les résultats du calcul ADAM se superposent bien aux résultats du calcul AMG, ce qui est tout à fait normal, car le spectre ADAM est la version éclatée de l'AMG. Les spectres de la figure 2.23 montrent que le choix des paramètres du calcul ADAM n'affecte pas le qualité des résultats. Sur le spectre radiatif à la température de 230 eV de l'AMG, on observe deux structures. La première, centrée sur 1,48 keV, est majoritairement constituée de la transition $6f_{7/2}-4p_{3/2}$ tandis que la deuxième est une somme des transitions $6f_{5/2}-4p_{1/2}$, $6d_{3/2}-4s_{1/2}$ et $6d_{5/2}-4s_{1/2}$ dont l'énergie moyenne est respectivement 1,632 keV, 1,699 keV et 1,706 keV. Dans le cas d'ADAM, chaque structure gaussienne de l'AMG est éclatée en des sous-structures correspondant aux différents états de charge (de 40^+ à 45^+) comme représenté sur la figure 2.23 a) dans le cas de la transition $6f_{7/2}-4p_{3/2}$. A la température de 350 eV, le nombre de transitions qui participent au spectre dans cette gamme en énergie est plus important (14 au total contre 7 pour 230 eV). Sur la figure 2.23 b) les transitions dominantes sont listées. Dans le cas d'ADAM, les sous-structures de chaque état de charge (de 47^+ à 53^+) associées à chaque transition sont mélangées, il est difficile de clairement les séparer et de les identifier.

La figure 2.24 présente la comparaison du spectre radiatif d'ADAM et de l'AMG où les transitions d'ADAM ont été élargies arbitrairement avec une largeur de 20 eV. Le spectre radiatif d'ADAM tend alors vers celui de l'AMG.

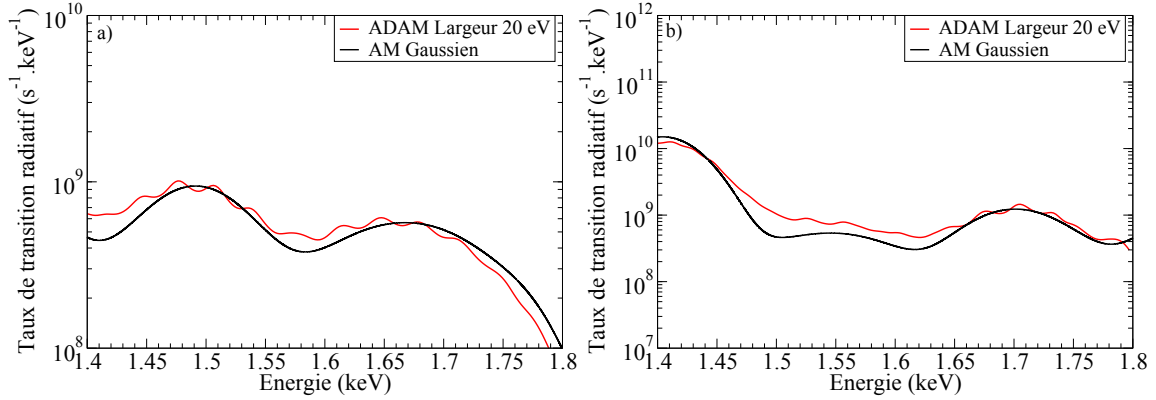


FIGURE 2.24 – Comparaison des spectres radiatifs E2 calculés avec l’AMG et ADAM pour deux températures de 230 eV (figure a) et 350 eV (figure b). Les transitions atomiques du spectre d’ADAM ont été élargies arbitrairement de 20 eV.

2.3.3.2 Comparaison des trois approches AMG/ADAM/MCDF

La figure 2.25, présente la comparaison du spectre radiatif de la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ pour les trois méthodes de calcul. Le profil des raies et des transitions est une lorentzienne de largeur prise arbitrairement à 100 meV. La température du plasma est de 316 eV et la densité de 10^{-2} g/cm³. Rappelons que cette comparaison ne peut s’effectuer :

- que sur le taux radiatif car nous ne disposons pas du formalisme pour calculer le taux NEET en mélange de configurations,
- que sur les états de charge élevés pour lesquels le nombre de configurations à calculer reste accessible pour le calcul MCDF.

Les taux radiatifs d’ADAM sont supérieurs à ceux de MCDF. Cette différence vient de la non prise en compte du couplage des moments cinétiques électroniques dans ADAM. Le tableau 2.9 compare le nombre de raies et le nombre de transitions du spectre MCDF et ADAM. Chaque transition d’ADAM correspond à un groupement de raies dans MCDF. Dans la région de plus faible densité de raies, ADAM permet de borner le taux radiatif calculé par MCDF. Pour le calcul ADAM, les fluctuations sont cependant bien plus grandes. L’introduction d’une méthode statistique utilisant le formalisme SOSA (Spin Orbit Split-Array) [BA79, BA85] permettrait de prendre en compte le couplage jj pour le calcul du taux NEET. Dans ce formalisme, chaque transition est élargie par une gaussienne dont sa largeur dépend des configurations électroniques initiale et finale. Cependant, ce formalisme n’existe actuellement que pour les transitions radiatives E1 [BA79, BA85] et E2 [Pai12]. Une étude est actuellement en cours pour une application dans le cas du processus NEET. Ce formalisme permettra de mieux encadrer le taux NEET.

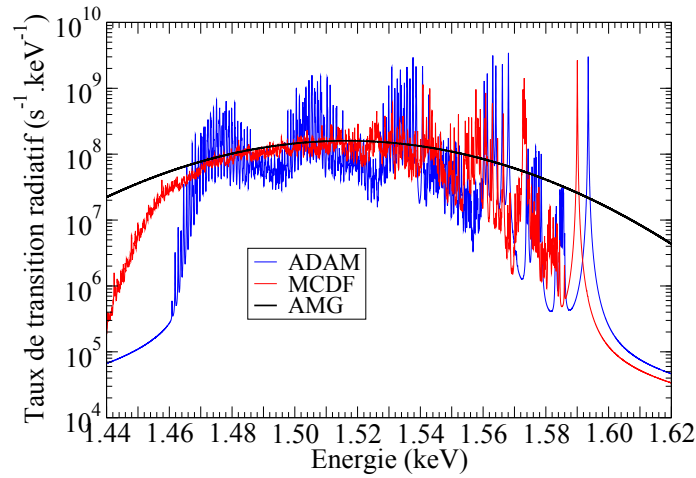


FIGURE 2.25 – Comparaison des trois approches sur la transition $6p_{1/2}-4p_{3/2}$ pour une température de plasma de 316 eV et une densité de 10^{-2} g/cm^3 . Les états de charge calculés avec ADAM et MCDF vont de 47^+ à 51^+ .

Q	Nombre de raies (MCDF)	Nombre de transitions (ADAM)
47^+	11 796 449	2 681
48^+	853 651	825
49^+	14 323	185
50^+	157	17
51^+	1	1

TABLEAU 2.9 – Comparaison du nombre de raies (MCDF) et du nombre de transitions (ADAM) du spectre radiatif de la figure 2.25.

2.3.4 Calcul du taux d'excitation nucléaire par effet NEET

La partie précédente nous a permis de déterminer le jeu de paramètres optimal permettant de calculer le taux NEET avec ADAM. Le calcul du taux NEET en éclatement de configurations est réalisé par la relation (2.42) où les largeurs atomiques tiennent compte uniquement des collisions inélastiques (2.43). Les caractéristiques des calculs ADAM sont les suivantes :

- orbitale k fermée si $|g_k - \bar{N}_k| < L_f$ avec $L_f = 10^{-3}$
- dispersion autour des populations moyennes : $\pm 3\sigma$
- éclatement en charge pris à $\bar{Q} \pm 3$
- critère de sélection des configurations : 99% de la probabilité binomiale cumulée pour le calcul de la fonction de partition et pour les transitions.

2.3.4.1 Taux NEET à 10^{-2} g/cm³

Le taux NEET dans un plasma de ^{201}Hg à une densité de 10^{-2} g/cm³ est calculé pour une plage en température allant de 190 eV à 400 eV par pas de 5 eV. La transition nucléaire est prise à 1,565 keV. La figure 2.26 présente le taux NEET en fonction de la température (figure a), et de l'état de charge moyen des atomes du plasma (figure b) dans le cas de l'AMG et du modèle ADAM.

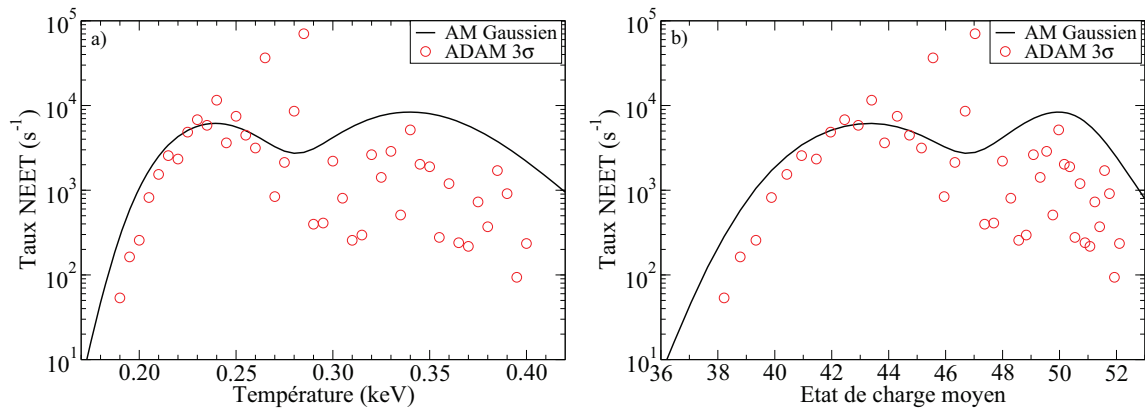


FIGURE 2.26 – Comparaison des taux NEET calculés avec l'AMG et ADAM. Le taux NEET est tracé en fonction a) de la température et b) de l'état de charge moyen.

Le taux NEET calculé par ADAM varie de façon continue jusqu'à une température de 250 eV. Au-delà, de grandes variations de plusieurs ordres de grandeur peuvent être observées entre deux températures très proches. Lorsqu'une transition atomique de probabilité élevée résonne exactement avec la transition nucléaire, le taux NEET est alors très grand comme par exemple à la température de 285 eV. Cependant, à 290 eV, le taux NEET perd plus de deux ordres de grandeur. Cette

différence ne peut pas être expliquée par le changement des probabilités des configurations car les deux températures sont très proches. Cette variation s'explique par la variation de l'énergie de la transition calculée dans le code ADAM. La configuration qui résonne à la température de 285 eV a une énergie légèrement différente à 290 eV et le taux s'effondre. Ce comportement n'est pas physique. L'énergie d'une configuration donnée (avec un nombre d'électrons sur les orbitales fixé) ne doit pas varier, elle doit être la même quelle que soit la température du plasma.

Cependant, la variation observée est liée à la méthode de calcul des énergies des configurations (équation 2.40), qui consiste à utiliser les termes \bar{U}_k et $\bar{V}_{kk'}$ issus du calcul d'atome moyen. En effet, ces énergies moyennes dépendent de la température du plasma considérée, ce qui n'est pas raisonnable d'un point de vue physique.

Pour illustrer cette variation, prenons les deux configurations initiales de plus basses énergies associées aux états de charge 42^+ et 44^+ qui permettent la transition $6s_{1/2}-4s_{1/2}$. Pour ces deux configurations, nous allons calculer l'énergie de la transition avec ADAM en faisant varier la température et donc l'état de charge moyen des atomes du plasma. La figure 2.27 représente la valeur de l'énergie de la transition $6s_{1/2}-4s_{1/2}$ pour deux configurations réelles des états de charge 42^+ et 44^+ en fonction de l'état de charge moyen. Sur cette figure les énergies des transitions calculées en CNFM sont indiquées.

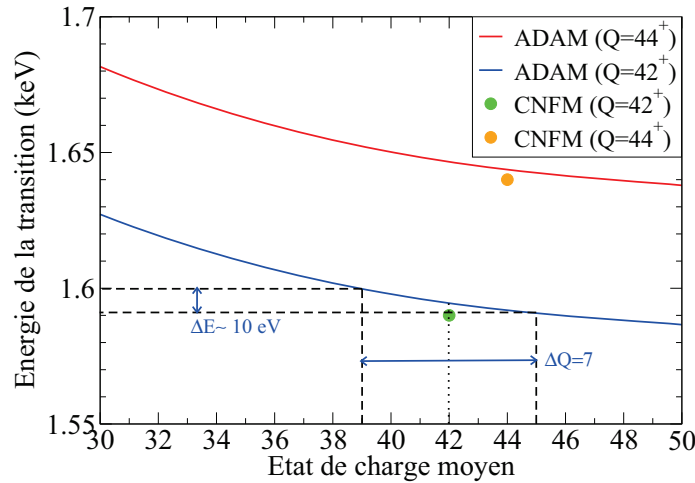


FIGURE 2.27 – Variation de l'énergie de la transition $6s_{1/2}-4s_{1/2}$ calculée avec ADAM pour les configurations réelles initiales de plus basses énergies associées aux états de charge 42^+ et 44^+ en fonction de l'état de charge moyen des atomes du plasma. Les énergies des transitions calculées en CNFM sont reportées sur la courbe.

Lorsque l'état de charge moyen des atomes du plasma est égal à l'état de charge de la configuration réelle (42^+ et 44^+) alors l'énergie de la transition calculée avec ADAM est à quelques eV du calcul CNFM. Les états de charge calculés avec ADAM sont ceux compris à plus ou moins trois de l'état de charge moyen du plasma. Par exemple, l'état de charge 42^+ est calculé lorsque l'état de charge moyen est compris

entre 38^+ et 45^+ . D'après la figure 2.27, la transition atomique de la configuration réelle du 42^+ varie de 10 eV pour des états de charge moyens compris entre 38^+ et 45^+ . Ceci nous permet de définir l'incertitude maximale que l'on a sur l'énergie des transitions atomiques calculée par ce modèle.

Ces variations de taux NEET (figure 2.26) ne sont pas observées sur toute la gamme en température. Pour bien comprendre le comportement des résultats, nous allons séparer la figure 2.26 en quatre régions selon leur température.

De 190 à 230 eV [$38,2 \leq \overline{Q} \leq 42,45$]

Sur la figure 2.26, un écart systématique est observé dans cette région entre les taux NEET déterminés avec ADAM et avec l'AMG. Dans les résultats des deux calculs, la transition M1, $6s_{1/2}-4s_{1/2}$ résonne avec la transition nucléaire. Dans cette région où l'état de charge moyen est compris entre 38,2 et 42,45, le taux NEET calculé par ADAM est cependant dû aux seuls états de charge 41^+ et 42^+ . Le nombre de transitions est important, la modélisation du taux NEET de l'AMG devrait donc être pertinente. Dans le calcul ADAM les électrons peuvent occuper uniquement les orbitales jusqu'à la couche P. Nous avons vu précédemment, sur la figure 2.5, que la probabilité d'occupation de la couche P augmente lorsque la température et donc l'état de charge moyen diminue. Il en est de même pour les couches supérieures à celle-ci (couches Q, R, S ...). Ainsi, l'écart systématique observé pourrait être imputé à la non prise en compte des configurations ayant des électrons sur des couches supérieures à la couche P dont les probabilités ne sont pas négligeables. La prise en compte de ces configurations ne peut être faite qu'au prix d'un temps de calcul très long. Cependant, les taux NEET obtenus ne diffèrent que d'un facteur 2 alors que le taux varie sur deux ordres de grandeur dans cette gamme en température.

De 230 à 260 eV [$42,45 \leq \overline{Q} \leq 45,15$]

Dans cette région, l'accord est très bon entre les résultats des deux calculs. Pour le calcul AMG, c'est toujours la transition $6s_{1/2}-4s_{1/2}$ qui contribue le plus à la valeur du taux NEET total. Précédemment, nous avons montré que cette transition était résonante pour un état de charge moyen de 42^+ (figure 2.7). C'est en effet ce qui est observé sur le calcul ADAM. La transition $6s_{1/2}-4s_{1/2}$ pour le 42^+ couvre de 1,532 à 1,641 keV via 185 987 transitions donnant ainsi un écartement moyen entre deux transitions de $5,8 \times 10^{-4}$ eV qui est bien plus faible que les largeurs atomiques (qui sont de l'ordre de 5×10^{-3} eV à 10^{-2} g/cm³). Le nombre de transitions est tellement grand dans cette région que le taux NEET n'est pas sensible à la variation des énergies des configurations avec la température. En effet, les transitions atomiques se superposent formant ainsi un spectre de transitions quasi continu. Le calcul du taux NEET par l'AMG est donc pertinent dans cette gamme en température de plasma.

De 260 à 290 eV [$45,15 \leq \bar{Q} \leq 47,37$]

Dans cette gamme en température, de grandes fluctuations commencent à être observées. L'augmentation de l'état de charge moyen des atomes du plasma provoque une diminution du nombre de transitions. Le taux NEET calculé avec ADAM commence à être sensible aux variations des énergies des transitions avec la température. En utilisant ADAM, il est difficile de conclure à la pertinence du modèle AMG pour un calcul du taux NEET dans cette région.

De 290 à 400 eV [$47,37 \leq \bar{Q} \leq 52,1$]

Les taux NEET calculés avec ADAM sont clairement inférieurs à ceux déduits du modèle de l'AMG et sont fortement dispersés car le nombre de transitions est encore plus faible. Le taux NEET ADAM pour cette région a été recalculé avec une sélection des configurations à 5σ afin d'augmenter le nombre de configurations (figure 2.28)

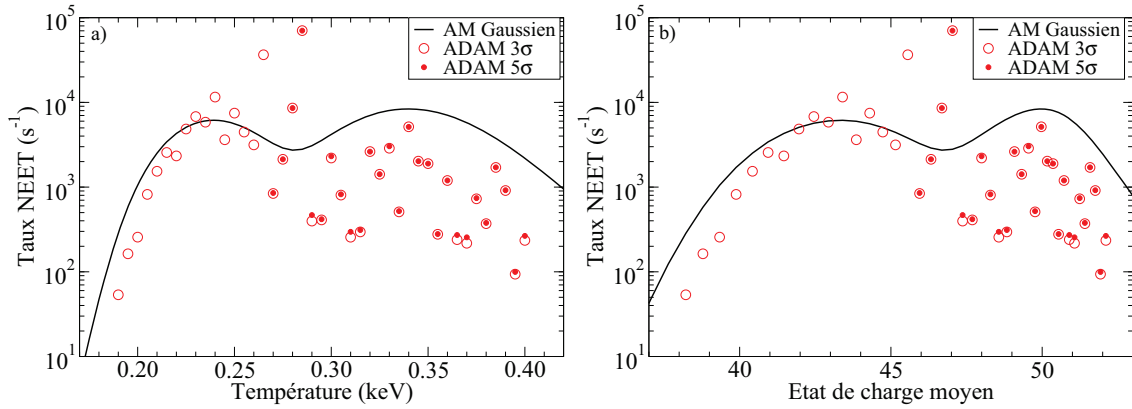


FIGURE 2.28 – Comparaison AM-ADAM avec une sélection des configurations à 5σ de la population moyenne de chaque orbitale.

Malgré une sélection à 5σ des configurations par rapport à la valeur moyenne, les valeurs des taux NEET dans la gamme en température [270-400 eV] restent sensiblement les mêmes. Les transitions supplémentaires ont des probabilités trop faibles pour que leur contribution au taux NEET total soit importante. Confirmant ce que nous avons vu lors de la comparaison des spectres radiatifs issus des calculs MCDF et de l'AMG, ce dernier surestime le taux à proximité des couches fermées où les nombres de configurations et de transitions restent modérés ($\sim 10^3$). Cependant, il se pourrait que l'ouverture des couches supérieures à P améliore l'écart entre les deux calculs.

2.3.4.2 Taux NEET à 10^{-3} g/cm^3

Le taux NEET, toujours comparé à l'AMG, est calculé avec ADAM à 10^{-3} g/cm^3 pour étudier les effets de densité. La figure 2.29 présente les résultats de la comparaison en fonction de la température (figure a) et de l'état de charge moyen des atomes du plasma (figure b). Les calculs ADAM sont réalisés avec une dispersion à 3σ et 5σ autour de la population moyenne.

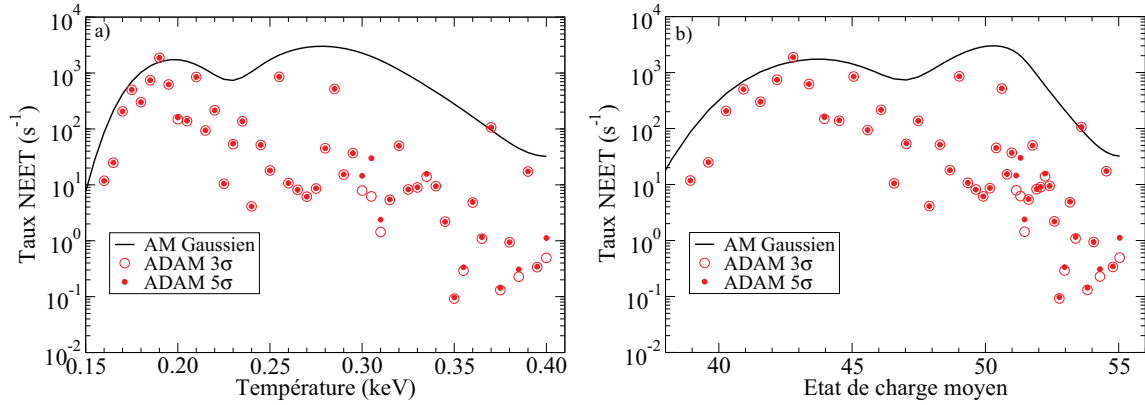


FIGURE 2.29 – Comparaison des taux NEET calculés avec l'AMG et ADAM à 10^{-3} g/cm^3 en fonction a) de la température et b) de l'état de charge moyen.

A basse température ($T_e \leq 200 \text{ eV}$ équivalent à $\bar{Q} \leq 42^+$), l'accord entre les résultats des deux calculs est assez correct mais moins bon qu'à une densité de 10^{-2} g/cm^3 (figure 2.26). A 10^{-3} g/cm^3 , la valeur des largeurs atomiques est plus faible qu'à une densité de 10^{-2} g/cm^3 car l'élargissement collisionnel est proportionnel à la densité électronique. Elles deviennent alors du même ordre de grandeur voire inférieures à l'écartement moyen entre deux transitions. De plus, pour obtenir le même état de charge moyen, un plasma de densité de 10^{-3} g/cm^3 nécessite une température plus faible qu'à 10^{-2} g/cm^3 . Ainsi, pour le même état de charge moyen, la probabilité d'occupation des orbitales est plus faible à 10^{-3} g/cm^3 qu'à 10^{-2} g/cm^3 , induisant une diminution du nombre de configurations. A haute température, l'écart entre les résultats de l'AMG et ADAM augmente, provoqué également par la diminution du nombre de configurations et des largeurs atomiques.

2.3.4.3 Détermination des fluctuations autour du taux NEET moyen

Quel que soit le modèle de physique atomique utilisé, la détermination d'un taux NEET est limitée par l'incertitude des calculs des énergies des transitions atomiques. Dans le cadre du modèle ADAM, l'énergie d'une configuration donnée varie avec la température, ce qui est un artefact du modèle. Nous avons montré dans le paragraphe 2.3.4.1, que cette variation était de plus ou moins 5 eV pour un éclatement en charge autour de l'état de charge moyen de 3. Ainsi, l'incertitude totale que nous avons sur l'énergie d'une transition donnée avec ADAM est estimée à plus ou moins 10 eV.

Pour le dimensionnement d'une expérience, nous devons estimer l'erreur induite sur le calcul du taux NEET et déterminer en particulier le taux NEET minimal que nous pouvons espérer obtenir. Un encadrement du taux NEET peut être calculé en faisant varier l'énergie de la transition atomique de plus ou moins 10 eV autour de la valeur de l'énergie de la transition nucléaire. Dans ce calcul, l'énergie de la transition atomique est arbitrairement modifiée d'une valeur $\Delta \pm 10$ eV prise par pas de 1 meV.

La figure 2.30 présente la variation du taux NEET autour de la transition nucléaire pour les températures de 230 eV (figure a) et 350 eV (figure b) à 10^{-2} g/cm³.

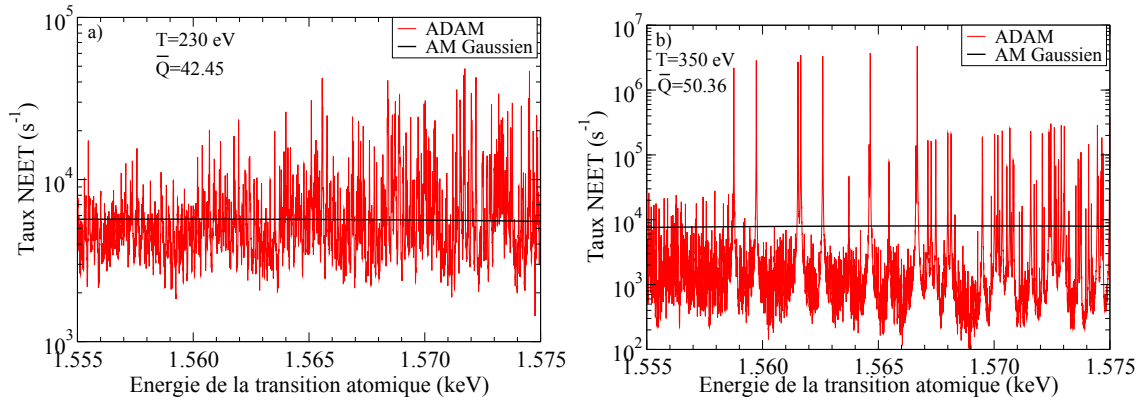


FIGURE 2.30 – Variation du taux NEET à plus ou moins 10 eV de la transition nucléaire (1,565 keV) pour le modèle ADAM (rouge) et AMG (noir) pour les températures de 230 eV (figure a) et 350 eV (figure b).

Les fluctuations du taux NEET à la température de 230 eV ($\bar{Q} = 42,45$) sont bien moins importantes qu'à la température de 350 eV ($\bar{Q} = 50,36$) car la densité de transitions y est bien plus importante. Le taux NEET varie sur un ordre de grandeur à 230 eV tandis qu'à 350 eV, les fluctuations sont réparties sur quatre ordres de grandeur.

A partir des spectres de la figure 2.30, on réalise l'histogramme de la distribution du taux NEET. Le taux NEET pouvant varier sur plusieurs ordres de grandeur, l'histogramme est alors construit en prenant son logarithme décimal. La figure 2.31 présente l'histogramme du logarithme du taux NEET pour la température de 230 eV (figure a) et de 350 eV (figure b) pour une largeur en énergie de transition atomique de ± 10 eV.

L'histogramme à la température de 230 eV est bien plus étroit que celui à 350 eV où la dissymétrie de la distribution est plus prononcée. A partir de ces distributions, le taux NEET moyen est défini comme la moyenne géométrique de la distribution. Afin de déterminer un encadrement du taux NEET moyen, on définit deux écarts-types notés σ^+ et σ^- qui déterminent respectivement la dispersion supérieure et inférieure à la moyenne. Ils sont calculés par :

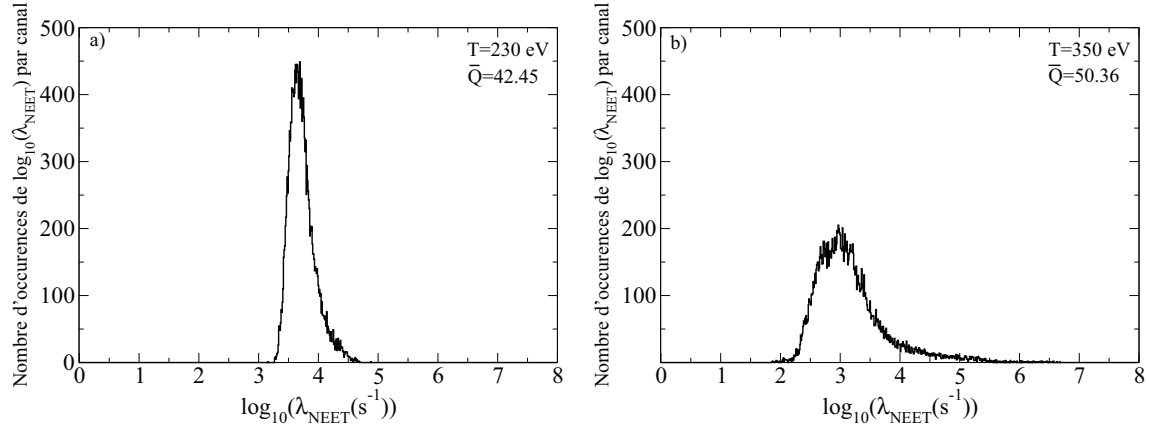


FIGURE 2.31 – Histogramme du logarithme du taux NEET pour une température de 230 eV en a) et de 350 eV en b). La largeur des canaux est constante et prise à 10^{-2} .

$$\begin{cases} \sigma^+ = \sqrt{\frac{\sum_{i=1}^{N_+} n_i (x_i - \bar{x})^2}{\sum_{i=1}^{N_+} n_i}} & \text{pour les } N_+ \text{ canaux vérifiant } x_i > \bar{x} \\ \sigma^- = \sqrt{\frac{\sum_{j=1}^{N_-} n_j (x_j - \bar{x})^2}{\sum_{j=1}^{N_-} n_j}} & \text{pour les } N_- \text{ canaux vérifiant } x_j \leq \bar{x} \end{cases} \quad (2.61)$$

où x et \bar{x} représentent le logarithme du taux NEET et sa moyenne. Le nombre de canaux de l'histogramme est représenté par N . Enfin, le terme n_k définit le nombre d'occurrences à la valeur du canal k . La probabilité que le taux NEET soit compris entre $\bar{x} - \sigma^-$ et $\bar{x} + \sigma^+$ est déterminée comme le rapport de leur intégrale sur l'intégrale totale inférieure et supérieure à la valeur moyenne. Typiquement, la probabilité que le taux NEET soit compris dans l'intervalle $\bar{x} + \sigma^+$ et $\bar{x} - \sigma^-$ est de l'ordre de 70%. La figure 2.32 présente le taux NEET et sa dispersion en fonction de la température (figure a) et de l'état de charge moyen des atomes du plasma (figure b). Ces résultats sont comparés aux résultats de l'AMG.

Dans la région en température autour de 250 eV, le taux moyen d'excitation par effet NEET calculé avec ADAM est en très bon accord avec les résultats du calcul AMG. Ensuite, lorsque la température augmente les résultats des deux calculs ne convergent plus, le taux NEET moyen est alors inférieur à l'AMG d'à peu près un ordre de grandeur. Une partie de cette différence peut s'expliquer par l'utilisation d'une moyenne géométrique qui est toujours inférieure à la moyenne arithmétique. On peut supposer par ailleurs que si le couplage des moments cinétiques des électrons était pris en compte, les fluctuations du taux NEET autour de la moyenne seraient beaucoup plus faibles. En effet, comme nous l'avons signalé au paragraphe 2.2.2, l'introduction du couplage jj a rapproché les taux radiatifs de ceux obtenus avec l'AMG en augmentant considérablement le nombre de raies. La prise en compte du

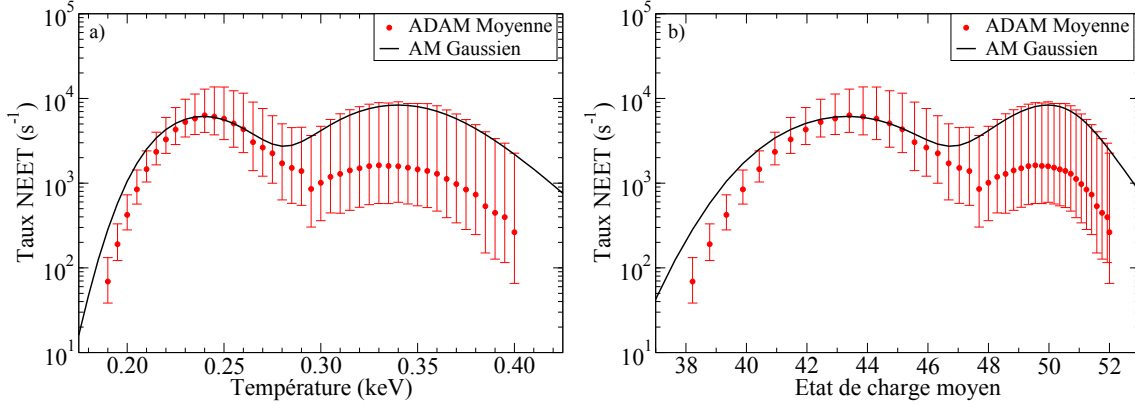


FIGURE 2.32 – Évolution de la moyenne taux NEET pour un plasma de ^{201}Hg à 10^{-2} g/cm^3 et de sa dispersion en fonction a) de la température et b) de l'état de charge moyen.

couplage jj dans ADAM peut être introduite de manière statistique. Pour cela, une extension du formalisme SOSA à l'élément de couplage atome-noyau doit être effectué.

2.3.5 Conclusion de la partie

Le code ADAM a été développé afin de calculer le taux NEET en configurations. Pour cela, il utilise la méthode dite de l'éclatement de configurations autour de l'atome moyen. L'énergie des configurations est calculée à partir des résultats de l'atome moyen. Cette méthode permet d'éviter la détermination d'un potentiel optimisé pour chaque configuration électronique. Afin de déterminer un taux NEET le plus précis possible sans que les temps de calcul soient rédhibitoires, nous avons étudié l'influence des différentes approximations qui sont faites pour la génération et le calcul des configurations. Les critères sélectionnés pour le calcul du taux NEET sont : un éclatement en charge de plus ou moins trois unités de charge, une déviation autour de la population moyenne des orbitales prise à 3σ et une sélection des configurations les plus probables prises à 99%. Les résultats du calcul du taux NEET ont été comparés avec ceux de l'AMG et ont montré un bon accord pour les températures comprises entre 190 à 260 eV ($38 \leq \bar{Q} \leq 45$), où la densité de transition est importante. A plus haute température, les résultats d'ADAM sont inférieurs à ceux de l'AMG. Cependant, dans cette région les deux modèles ont des limites. D'une part le faible nombre de transitions rend l'approximation gaussienne peu pertinente et, d'autre part, dans le calcul ADAM, il faudrait ouvrir les couches supérieures à la couche P pour augmenter le nombre de configurations.

Quel que soit le code de physique atomique utilisé, le calcul d'un taux NEET est limité à l'incertitude sur les énergies des transitions atomiques calculées. Le taux NEET ne peut ainsi être qu'encadré. Dans le cas d'ADAM, l'incertitude sur l'énergie des transitions est estimée à $\pm 10 \text{ eV}$. A partir de ces incertitudes nous avons

pu déterminer un encadrement du taux NEET et montré que les fluctuations maximales du taux NEET calculé avec ADAM sont de l'ordre d'un facteur 2 par rapport aux taux NEET moyens pour des températures inférieures à 260 eV. Les dispersions deviennent ensuite plus importantes lorsque la température augmente. La prise en compte du couplage jj de façon statistique devrait permettre de diminuer les dispersions dans cette région.

Ainsi, si l'on souhaite dimensionner une expérience, il faut se baser sur les taux NEET calculés à des états de charge moyens de 42^+ avec des densités supérieures à 10^{-2} g/cm³. Dans cette région, la densité de transitions est tellement élevée que même si l'énergie des transitions atomiques est mal connue, il existe une grande probabilité pour qu'il y en ait une ou plusieurs qui résonnent avec la transition nucléaire. Ceci n'est pas le cas lorsque l'état de charge moyen est autour de 50^+ , où le nombre de transitions est beaucoup plus faible.

2.4 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, les différentes étapes qui nous ont amenées à développer le calcul du taux NEET en éclatement de configurations ont été présentées. Dans un premier temps, le calcul du taux NEET a été réalisé à l'aide du modèle de l'AMG, modèle utilisé dans le code ISOMEX, où chaque transition atomique moyenne est élargie par une gaussienne dont l'écart-type tient compte des différentes configurations électroniques des atomes du plasma. Pour des plasmas à 10^{-2} g/cm³, les résultats des calculs de taux NEET ont montré que deux régions autour des états de charge moyens 42^+ et 50^+ présentaient les taux NEET les plus élevés (de 10^3 à 10^4 s⁻¹). Cependant, l'utilisation du modèle d'AMG pour la description d'un phénomène résonant est une hypothèse forte qui doit être justifiée.

Pour cela, nous avons réalisé une comparaison avec des calculs MCDF sur le spectre radiatif de la transition E2, $6p_{1/2}-4p_{3/2}$, pour des états de charge compris entre 47^+ et 51^+ . Les résultats ont montré que l'approximation gaussienne était pertinente pour les faibles états de charge (47^+ et 48^+), lorsque l'écart en énergie entre deux raies était inférieur à la largeur individuelle de chaque raie. Cependant, les temps de calcul MCDF sont rédhibitoires pour calculer des états de charge inférieurs à 47^+ . Le calcul du taux NEET en multi-configuration est difficilement réalisable dans le cas du ²⁰¹Hg.

Le code ADAM a ainsi été développé pour calculer le taux NEET en éclatement de configurations autour de l'atome moyen. Les résultats ont montré un bon accord entre ADAM et l'atome moyen gaussien pour des états de charge autour de 42^+ , là où la densité de transitions est importante. La région des états de charge autour de 50^+ est sujette à de fortes dispersions, les taux calculés par l'AMG dans cette région sont surestimés. Ainsi, pour le dimensionnement d'une expérience sur le ²⁰¹Hg, il faut prendre en compte les taux NEET calculés dans la région d'état de charge autour de 42^+ à des densités supérieures à 10^{-2} g/cm³ car les dispersions du taux NEET dans

cette région sont faibles (inférieures à un facteur 2 du taux NEET moyen).

Le dimensionnement d'une expérience nécessite la détermination du nombre de noyaux que l'on peut exciter à l'issue d'un tir laser. Pour cela, il est nécessaire de coupler les calculs de taux NEET réalisés avec l'atome moyen gaussien avec un code hydrodynamique. Le calcul du nombre de noyaux excités se fera dans les régions en température et densité où les calculs en atome moyen sont pertinents donnant ainsi une estimation minorante, mais réaliste, du nombre d'isomères produits lors d'un tir laser.

Estimation du nombre d'isomères produits lors d'une interaction laser

Avant qu'une démarche expérimentale ne soit menée pour mettre en évidence l'excitation nucléaire dans un plasma de ^{201}Hg , il est nécessaire d'estimer le nombre d'isomères qu'il est possible de produire lors d'une interaction laser-matière. Le calcul du nombre de noyaux excités à l'issue d'un tir laser nécessite le couplage des taux d'excitations déterminés dans le chapitre précédent avec un code hydrodynamique. Ce type de code va permettre de déterminer l'évolution au cours du temps des conditions thermodynamiques (température, densité, état de charge moyen...) d'une cible soumise à une impulsion laser. Les plages de température et de densité du plasma sont très étendues (typiquement de 10^{-5} à 10 g/cm^3 pour des températures allant de 10 eV à quelques keV). Ces grandes variations de température et densité rendent prohibitifs un calcul de taux NEET avec ADAM. La cartographie du taux NEET sera ainsi calculée avec le modèle de l'AMG. Nous devons alors nous assurer que les isomères sont produits dans des régions de température et de densité où nous pouvons avoir confiance dans les valeurs du taux NEET. Nous montrerons qu'une partie des isomères qui ont été formés respectent ces conditions.

Dans une première partie, nous présenterons les généralités de l'interaction laser-matière en régime nanoseconde. Les différentes zones caractéristiques du plasma ainsi que le comportement de la physique atomique dans ces zones seront décrits. Nous détaillerons brièvement le code hydrodynamique Chivas utilisé. Nous présenterons ensuite la méthode de la température d'ionisation qui nous permettra de coupler les taux NEET calculés à l'équilibre thermodynamique avec le code hydrodynamique. Enfin, dans une dernière partie, nous essayerons de déterminer l'influence d'une physique atomique hors équilibre thermodynamique sur le nombre d'isomères estimé.

3.1 Généralités sur l'interaction laser-matière en régime nanoseconde

3.1.1 Description d'un plasma créé par laser

La matière s'ionise par absorption multiphotonique dans les premières picosecondes de l'interaction d'un laser de puissance avec une cible. Le laser se propage alors dans le plasma qui vient de se former en y déposant une partie de son énergie. La figure 3.1 présente le profil spatial typique d'une cible à l'état de plasma, à un

instant donné, en densité ρ et température T_e au cours de l'interaction d'une impulsion laser nanoseconde sur une cible de numéro atomique élevé. Le rayon de détente caractérise la distance parcourue par le plasma lors de sa détente dans le vide. Le laser se propage de la droite vers la gauche de la figure.

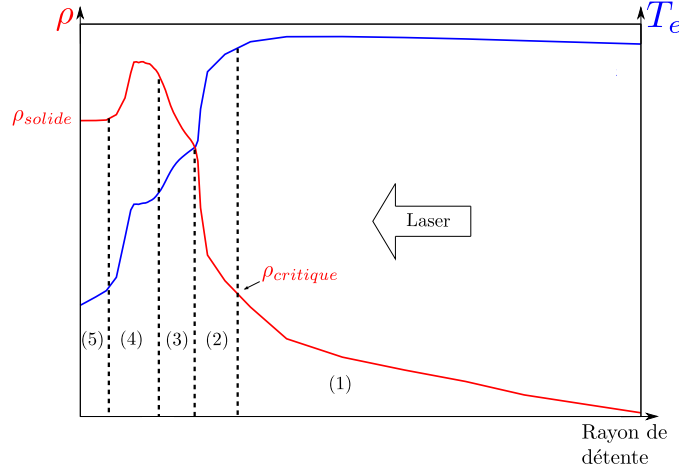


FIGURE 3.1 – Vue de profil de la température T_e et de la densité ρ du plasma à un instant donné lors d'un tir laser. La couronne, la zone de conversion, la zone de ré-émission et la zone sous-choc sont notées de 1 à 4 respectivement. La zone (5) représente la portion de cible non perturbée.

Le plasma peut être séparé en quatre régions spatiales différentes, qui dépendent de sa densité : la zone sous-critique ou couronne (1), la zone de conversion (2), la zone de ré-émission (3) et la zone sous choc (4).

3.1.1.1 Zone sous-critique (1)

Cette région du plasma, généralement appelée couronne, est une région de basse densité de matière ($\rho < 10^{-2}$ g/cm³) et de température élevée ($T_e \approx$ keV). On peut montrer que l'impulsion laser se propage dans cette zone tant que la densité du plasma est inférieure à une valeur seuil nommée densité électronique critique n_c [Dau93]. A cette densité, le laser ne se propage plus dans la matière, il est alors réfléchi. La valeur de la densité critique est donnée par la relation suivante :

$$n_c = \frac{1,11 \times 10^{21}}{\lambda_L^2} \cos^2 \theta \quad (3.1)$$

où n_c [e⁻.cm⁻³] est la densité électronique critique, λ_L [μm] est la longueur d'onde du laser et θ est l'angle d'incidence du laser. Ainsi, plus la longueur d'onde du laser est petite, plus le laser pénètre profondément dans la cible. Par exemple, pour un laser Nd :Yag de longueur d'onde 1,06 μm incident à 45° sur la cible, la densité critique est de 7×10^{20} e⁻.cm⁻³. Rappelons que la densité électronique n_e est reliée à la densité de matière ρ par la relation suivante :

$$n_e = \frac{\overline{Q}\mathcal{N}_A}{M_A}\rho \quad (3.2)$$

avec le nombre d'Avogadro \mathcal{N}_A , M_A la masse molaire de l'élément et \overline{Q} l'état de charge moyen du plasma.

L'interaction du laser avec le plasma s'effectue à travers deux mécanismes : l'absorption collisionnelle et l'absorption résonante. L'absorption collisionnelle est régie par le processus de Bremsstrahlung inverse ; un électron oscillant dans le champ électrique du laser peut transférer son énergie d'oscillation au milieu par collision avec un ion. Le laser dépose ainsi son énergie tout au long de la couronne jusqu'à la densité critique. Le coefficient d'absorption associé à ce processus, noté K [cm^{-1}], s'écrit [Key79] :

$$K = \frac{10^6 \rho^2 Z}{kT_e^{3/2} \left(1 - \frac{\rho}{\rho_c}\right)^{1/2} \lambda_L^2} \quad (3.3)$$

avec ρ [g/cm^3] la densité massique, ρ_c [g/cm^3] la densité massique critique, Z le numéro atomique du matériau et λ_L [μm] la longueur d'onde du laser. L'expression (3.3) montre que l'absorption collisionnelle est d'autant plus importante que la longueur d'onde du laser est courte et que l'énergie laser est essentiellement déposée au voisinage de la densité critique. Le dépôt d'énergie par ce processus est dominant pour des impulsions nanosecondes.

En régime nanoseconde, une petite part de l'énergie laser est déposée également par absorption résonante. Ce processus n'intervient qu'en incidence oblique dans un gradient de densité et lorsque le champ électrique du laser est contenu dans le plan d'incidence (on parle alors de polarisation P) comme le représente la figure 3.2. Il existe alors une composante du champ électrique qui pénètre sous forme d'une onde évanescente dans la cible au-delà de la densité critique. Cette onde peut générer une onde plasma (onde longitudinale) qui accélère les électrons du plasma donnant lieu à une population d'électrons de haute énergie.

3.1.1.2 Zone de conversion (2)

La zone de conversion, située au-delà de la densité critique ($\rho > \rho_c$ et $T_e > 1$ keV), est chauffée par conduction thermique à partir de la zone sous-critique. Le milieu se refroidit par émission de rayonnement X. Comme le milieu est optiquement mince à son propre rayonnement, ce dernier traverse la zone de conversion ainsi que la couronne où il est très peu absorbé et donne lieu au spectre X mesuré en face avant. L'autre partie de l'émission X émise en direction de la cible est absorbée par une région plus dense nommée la zone de ré-émission.

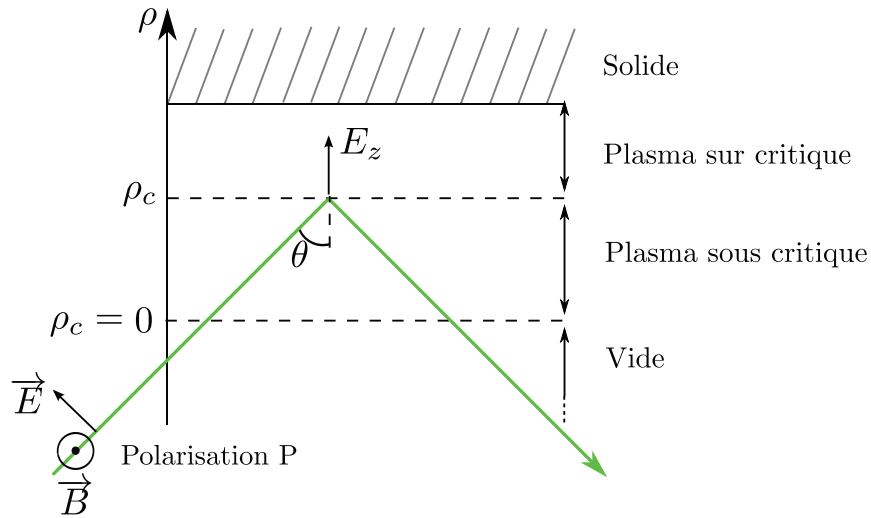


FIGURE 3.2 – Schéma représentant le champ électrique du laser le long du gradient de densité du plasma en fonction de la polarisation du laser.

3.1.1.3 Zone de ré-émission (3)

La zone de ré-émission absorbe l'émission X de la zone de conversion et est ainsi chauffée et ionisée. La température y est moins élevée que dans la zone de conversion ($T_e \approx 100$ eV) mais sa densité y est plus importante ($\rho \approx 1$ g/cm³). Le rayonnement émis par cette zone peut en partie traverser la zone de conversion et la couronne pour donner lieu à une composante thermique du spectre radiatif observé en face avant. Ce rayonnement peut aussi être absorbé dans les zones encore plus denses de la cible. Ces cycles d'absorption puis ré-émission donnent lieu à la formation d'une onde radiative qui se propage à l'intérieur de la cible [Dau93].

Dans le cas d'une interaction avec un matériau de petit numéro atomique (autour de $Z=13$), les zone de conversion et de ré-émission sont remplacées par une zone unique, la zone de conduction, chauffée par conduction thermique. Son émission X est responsable du spectre en face avant. Cependant, cette émission X n'est pas suffisamment importante pour donner lieu à une onde radiative.

3.1.1.4 Zone sous choc (4)

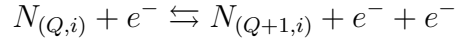
Enfin, la dernière zone est la zone sous-choc, où les hautes pressions provoquées par l'interaction laser, engendrent une augmentation de la densité pouvant être supérieure à la densité du solide. La température y est trop faible pour pouvoir engendrer une émission de rayonnement X. Plus profondément, il peut rester une portion de cible non-perturbée (zone 5 de la figure 3.1) si celle-ci est suffisamment épaisse.

3.1.2 Physique atomique dans l'interaction laser-matière

L'émission et l'absorption X jouent un rôle important dans l'hydrodynamique d'un plasma et ce, d'autant plus que le numéro atomique de la cible est élevé. Lors d'une interaction laser-matière, les populations électroniques des différentes espèces ioniques du plasma sont régies par les processus collisionnels et les processus radiatifs. La liste des différents processus les plus importants est présentée ci-dessous avec entre parenthèse le processus inverse correspondant. Le terme $N_{Q,i}$ représente la population de l'ion d'état de charge Q , dans l'état quantique i , l'astérisque indique qu'il se trouve dans un état excité.

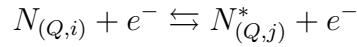
Processus collisionnels

- Ionisation collisionnelle (recombinaison à 3 corps)



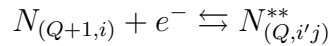
Au cours d'une collision entre un électron libre du plasma et un ion, un des électrons liés de l'ion est émis dans le continuum. Dans le processus inverse, lors de la collision d'un ion avec deux électrons libres du plasma, un des électrons se recombine et l'énergie libérée durant la recombinaison est transférée au deuxième électron sous forme cinétique.

- Excitation collisionnelle (désexcitation collisionnelle)



Un électron libre excite par collision un ion du plasma. Dans le processus inverse, l'ion se désexcite en transférant son énergie d'excitation à l'électron libre.

- Recombinaison diélectronique (autoionisation)



La capture d'un électron libre du plasma peut être accompagnée par l'excitation d'un électron lié sur une autre couche électronique. L'ion peut alors être dans un état doublement excité. La désexcitation de l'ion peut alors se réaliser de deux façons

différentes. Soit, l'un des électrons retrouve son état fondamental, l'énergie libérée est transférée au deuxième électron qui est alors émis dans le continuum, c'est l'effet Auger. Sinon, les électrons peuvent retrouver les états de plus basses énergies par désexcitation radiative.

Processus radiatifs

- Émission spontanée (photoexcitation)

$$N_{(Q,j)}^* \rightleftharpoons N_{(Q,i)} + h\nu_{ij}$$

Un ion préalablement dans un état excité se désexcite par émission d'un photon d'énergie égale à l'énergie de la transition. Dans le processus inverse, l'absorption d'un photon incident porte un ion dans un état excité.

- Émission stimulée

$$N_{(Q,j)}^* + h\nu_{ij} \rightleftharpoons N_{(Q,i)} + h\nu_{ij} + h\nu_{ij}$$

L'émission stimulée est une émission cohérente qui est à la base de l'effet laser.

- Recombinaison radiative (photoionisation)

$$N_{(Q+1,j)} + e^- \rightleftharpoons N_{(Q,i)} + h\nu_{ij}$$

La recombinaison radiative est la capture d'un électron libre du plasma par un ion dont l'énergie libérée est émise sous la forme d'un photon. Dans le processus inverse, l'absorption d'un photon par l'ion entraîne son ionisation.

A partir de ces processus, la variation de la population de chaque niveau électronique est régie par un modèle collisionnel-radiatif :

$$\frac{dN_k^Q}{dt} = \sum_{Q'} \sum_i N_i^{Q'} A_{(Q',i) \rightarrow (Q,k)} - N_k^Q \sum_{Q''} \sum_j B_{(Q,k) \rightarrow (Q'',j)} \quad (3.4)$$

où A et B représentent respectivement les taux de peuplement et de dépeuplement du niveau k et N_k^Q la population électronique du niveau k de l'état de charge Q . Cet

ensemble d'équations, généralement appelées équations maitresses, est impossible à résoudre de manière générale compte tenu du nombre de niveaux présents dans le plasma.

Dans les plasmas produits par laser, les régions définies dans la partie précédente peuvent cependant être décrites par différents régimes d'équilibre. Dans ces régimes, des approximations rendent possible plus ou moins facilement l'extraction des populations N_k^Q . Pour des plasmas de fortes densités ($\rho > 10^{-1}$ g/cm³), la physique atomique peut être modélisée dans le cadre de l'équilibre thermodynamique local (ETL). A l'opposé, pour des régions du plasma de faible densité ($\rho < 10^{-3}$ g/cm³) la description se fait dans le cadre de l'équilibre coronal (EC). Enfin, dans des gammes de densité intermédiaire, la physique atomique est plus difficile à décrire : on s'appuie pour cela sur des modèles d'équilibre collisionnel-radiatif (ECR). Dans ces deux derniers régimes d'équilibre, la physique atomique est hors équilibre thermodynamique local (HETL).

3.1.2.1 L'équilibre thermodynamique local (ETL)

Un plasma est à l'équilibre thermodynamique si le libre parcours moyen des espèces composants le plasma (électrons, photons et ions) est inférieur à sa dimension. Dans cet équilibre, la distribution des espèces suit une distribution de Maxwell pour les électrons et les ions et une distribution de Planck pour les photons. Cependant dans les plasmas que nous étudions, l'équilibre thermodynamique n'est jamais atteint. On peut toutefois encore décrire un équilibre thermodynamique local : il s'agit de régions du plasma dont les dimensions caractéristiques restent grandes comparé aux libres parcours moyens des électrons et des ions mais plus petites que celui des photons. Chacune de ces régions est alors caractérisée par un couple donné de densité et température. De manière quantitative, une partie du plasma peut être modélisée par cet équilibre si sa densité électronique n_e [cm⁻³] vérifie la relation suivante [Sal98] :

$$n_e \gg 1 \times 10^{13} T_e^3 \left(\frac{\Delta E^Q}{T_e} \right)^{5/2} \quad (3.5)$$

avec T_e [eV] la température électronique et ΔE^Q [eV] l'énergie d'ionisation de l'état de charge Q . Cet équilibre est rencontré dans des plasmas denses ($\rho > 10^{-1}$ g/cm³) où les processus collisionnels sont assez importants pour assurer une thermalisation du système entre les électrons et les ions (c'est le cas de la zone de ré-émission et la zone sous-choc).

Dans cet équilibre, pour un ion d'état de charge Q , la probabilité initiale d'un niveau ou d'une configuration électronique, noté $P(k^Q)$, est déterminée à l'aide de la fonction de partition de l'ion d'état de charge Q , Z_Q :

$$P(k^Q) = \frac{g_k^Q e^{(-\beta E_k^Q)}}{Z_Q} = \frac{g_k^Q e^{(-\beta E_k^Q)}}{\sum_i g_i^Q e^{(-\beta E_i^Q)}} \quad (3.6)$$

avec E_k^Q l'énergie du niveau ou de la configuration k dans un ion d'état de charge Q , g_k son poids statistique et $\beta = 1/kT$. Les probabilités de chaque état de charge sont déterminées quant à elles par l'équation de Saha-Boltzmann [Sal98] :

$$\frac{N_{Q+1}}{N_Q} = \frac{2}{n_e} \left(\frac{m_e c^2 k_B T_e}{2\pi (\hbar c)^2} \right)^{3/2} \frac{Z_{Q+1}}{Z_Q} \exp(-\beta(\varepsilon_{Q+1} - \varepsilon_Q)) \quad (3.7)$$

où ε_{Q+1} et ε_Q sont, respectivement, les énergies d'ionisation des états de charge $Q+1$ et Q . La densité et la température électronique sont notées respectivement n_e et T_e .

Ainsi, dans cet équilibre, la détermination des probabilités de chaque état ou de chaque configuration électronique ne nécessite que la connaissance de leur énergie et de leur poids statistique. La résolution de l'ensemble des équations maîtresses (3.4) n'est pas nécessaire pour extraire les populations N_k^Q .

Si l'équilibre thermodynamique local n'est pas atteint, on peut toutefois définir des températures électroniques et ioniques (via les distributions de Maxwell). Cependant, ces deux températures sont différentes et dans la suite on ne discutera que de la température électronique.

3.1.2.2 L'équilibre coronal (EC)

L'équilibre coronal s'installe lorsque la densité du plasma est faible ($\rho < 10^{-3}$ g/cm³). Cet équilibre est typiquement atteint dans la couronne du plasma. La population des niveaux est déterminée par la résolution de l'ensemble des équations maîtresses (3.4) stationnaires en négligeant par ailleurs certains processus. En effet, dans ces plasmas, la recombinaison à 3 corps (proportionnelle à n_e^2) devient négligeable devant la recombinaison radiative et la recombinaison diélectronique (pour les éléments lourds comme l'or). De plus, la probabilité de peupler un état excité est très faible dans cet équilibre, les ions sont essentiellement dans leur état fondamental.

3.1.2.3 L'équilibre collisionnel-radiatif (ECR)

Dans les régions où la densité du plasma est intermédiaire aux régions citées précédemment ($10^{-3} \leq \rho \leq 10^{-1}$ g/cm³), comme c'est le cas dans la zone de conversion, le plasma ne peut être décrit par les deux régimes précédents. Dans ces plasmas, le rayonnement fuit le milieu et les collisions électroniques ne permettent pas de thermaliser le système. La description de ces plasmas est réalisée à l'aide de l'équilibre collisionnel-radiatif en résolvant l'ensemble des équations maîtresses (3.4). Afin de simplifier cette résolution, il est possible de se placer dans le cas stationnaire (c'est-à-dire en considérant la variation des populations N_k^Q constante au cours du temps). Pour une interaction laser en régime nanoseconde, cette approximation est justifiée car le temps d'évolution du plasma est de l'ordre de la dizaine de picosecondes, tandis que le temps d'évolution des niveaux excités est de l'ordre de grandeur des temps de désexcitation radiative c'est-à-dire inférieur à la picoseconde.

De nombreux codes existent pour modéliser ces plasmas. Ils se différencient par leur modèle de physique atomique (ion moyen, configurations, superconfigurations ..) et leurs méthodes pour calculer les taux et sections efficaces des différents processus atomiques (calculs quantiques, expressions analytiques...). Nous pouvons en citer quelques-uns tel qu'AVERROES [Pey00], HULLAC [Kla07], ABAKO [Flo09] et bien d'autres encore. Des comparaisons entre les différents modèles sont effectuées au sein de différents ateliers [Lee97, Bow03, Bow06, Rub07, Fon09]. Les résultats des comparaisons des codes HETL montrent que les résultats peuvent être assez différents, comme par exemple sur les états d'ionisation ou les spectres d'émissivité, ceci illustrant bien la difficulté de la modélisation de ce type de plasma.

Dans la suite du chapitre, des résultats d'AVERROES seront utilisés qui est un code de physique atomique HETL. Ces calculs ont été réalisés par Franck Gilleron du CEA/DIF. Le code AVERROES est un modèle collisionnel-radiatif basé sur la méthode des super-configurations [BS89, BS97, BS00b]. Cette méthode consiste à regrouper les configurations électroniques proches en énergie dans une même super-configuration. Par exemple, la super-configuration non-relativiste suivante :

$$(1s)^2(2s2p)^8(3s3p3d)^{18}(4s4p4d4f)^{16}$$

regroupe 223 configurations non-relativistes et 8 535 configurations relativistes d'énergie proche [Pai14]. L'ensemble des équations maîtresses est résolu en ne considérant que les super-configurations. Dans une seconde étape les configurations électroniques au sein d'une même super-configuration sont traitées dans le cadre de l'équilibre thermodynamique local (c'est-à-dire que chacune des probabilités des configurations est pondérée par un facteur de Boltzmann).

3.1.3 Simulation de l'interaction laser-matière

Le code d'interaction laser-matière Chivas

Dans cette thèse, les simulations hydrodynamiques sont réalisées avec le code Chivas d'Alain Decoster [Jac91]. C'est un code hydrodynamique Lagrangien, monodimensionnel, où les simulations peuvent être réalisées en symétrie plane, cylindrique ou sphérique. Chivas résout les équations qui régissent le mouvement, la conservation de l'énergie interne, du nombre de particules, du transfert de rayonnement et de la chaleur [Dau93]. Pour déterminer l'évolution de la cible au cours du temps, celle-ci est divisée en mailles. Les mailles se déplacent avec le fluide, conservant ainsi une masse constante durant tout le calcul. L'épaisseur des mailles suit une progression géométrique de raison r où la plus fine est à la surface de la cible irradiée. Par exemple, supposons une cible d'épaisseur L , divisée en n mailles, l'épaisseur initiale de la première maille u_0 s'écrit :

$$u_0 = \frac{L(1-r)}{(1-r^{n+1})}. \quad (3.8)$$

Les mailles suivantes auront une épaisseur égale à $u_{i+1} = r \times u_i$ où i est le numéro de la maille.

Le code permet de prendre en compte le refroidissement du plasma dû à son expansion latérale, on parle alors de simulation 1D_{1/2}. Le dépôt de l'énergie laser est réalisé par les processus de Bremsstrahlung inverse le long du parcours du laser. A la densité critique, le laser dépose une partie de son énergie, d'une fraction ajustable, par absorption résonante avant d'être réfléchi. Le transport de l'énergie laser par les électrons est modélisé par le transport classique de Spitzer et Härm [Spi13] dont le flux de chaleur Q est limité afin de ne pas dépasser le flux de chaleur d'un écoulement libre :

$$Q \leq f_{lim} n_e T_e \sqrt{\frac{T_e}{m_e}} \quad (3.9)$$

Le coefficient de flux limite f_{lim} est un paramètre ajustable de la simulation. La valeur de ce paramètre dépend à la fois de la longueur d'onde du laser et de son intensité [Dau93]. C'est le premier paramètre qui est modifié pour rendre compte des expériences. Dans la suite de ce chapitre, les calculs hydrodynamiques sont réalisés avec un coefficient de flux limite de 0,08 comme préconisé dans la référence [Hau84].

Modélisation de la physique atomique dans le code Chivas

Le modèle de physique atomique utilisé dans un code hydrodynamique doit permettre de déterminer les valeurs de l'état de charge moyen à de nombreuses densités et températures. Celles-ci sont indispensables pour la détermination des coefficients de transport (absorption de l'énergie laser, conductivité thermique...), de l'émissivité et de l'opacité pour le transfert radiatif. Ce modèle doit donc être simple et rapide, au détriment du niveau de détail. Dans le code Chivas, la description de la physique atomique est prise en compte à travers un modèle collisionnel-radiatif basé sur le modèle d'atome-moyen hydrogéoïde écranté [Zim80], appelé NOHEL [Dec94]. La configuration moyenne des atomes du plasma est caractérisée par les couches n uniquement. Dans un modèle hydrogénique écranté, l'énergie d'une configuration électronique $E(C)$ est approchée par la formule hydrogéoïde [Zim80] :

$$E(C) = 13,6 \sum_i \frac{N_i Z_i^2}{n_i^2} \quad (3.10)$$

où N_i est le nombre d'électrons dans la couche i caractérisée par son nombre quantique principal n_i . Le terme Z_i est la charge écrantée qui permet de tenir compte de l'écrantage du potentiel nucléaire par les électrons spectateurs :

$$Z_i = Z_N - \sum_j \sigma_{ij}(N_j - \delta_{ij}) \quad (3.11)$$

où Z_N est la charge du noyau et le terme δ_{ij} permet d'éviter l'autoécranage. Les termes σ_{ij} sont les constantes d'écran qui sont ajustées pour un modèle en couche n uniquement [Mor82].

Cependant, la recombinaison diélectronique, processus important dans la détermination de l'état de charge moyen des ions n'est pas pris en compte dans la version de NOHEL utilisé dans le code hydrodynamique. Cette prise en compte est délicate dans un modèle de physique atomique en atome moyen [Mor88]. En utilisant le formalisme développé dans la référence [Alb99, Alb00], une version de NOHEL, appelée NOHEL2e, permet de prendre en compte ce processus. Cependant, cette version n'est pas utilisable en ligne dans un code hydrodynamique. La figure 3.3 présente la comparaison de l'état de charge moyen en fonction de la température électronique entre NOHEL et NOHEL2e. Ces valeurs sont comparées au code AVERROES [Pey00].

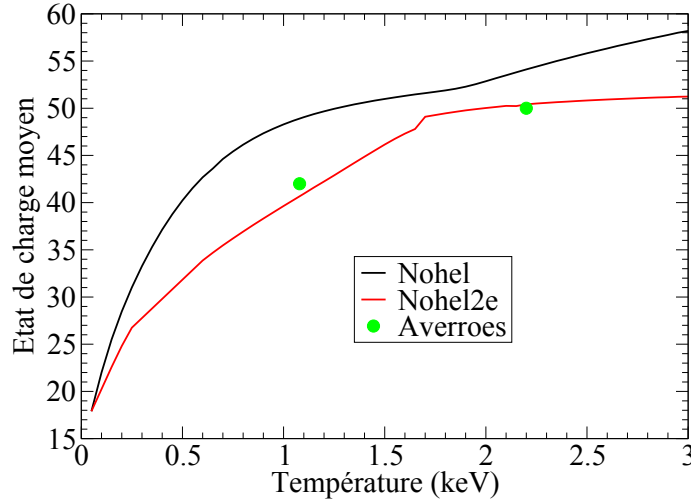


FIGURE 3.3 – Comparaison de la variation de l'état de charge moyen en fonction de la température entre NOHEL, NOHEL2e et AVERROES pour un plasma de mercure à 10^{-2} g/cm³.

Les codes NOHEL2e et AVERROES sont en bon accord. Comme attendu, l'état de charge moyen de NOHEL2e et AVERROES tend vers 52^+ lorsque la température augmente. En effet, cette valeur correspond à la fermeture de couche $Z=28$ pour lequel la couche M est pleine. Le code NOHEL surestime la valeur de l'état de charge moyen par rapport à AVERROES et NOHEL2e. Pour certaines températures ($T_e \sim 1$ keV), l'ionisation moyenne peut être majorée de 9 unités de charge. Pour la détermination du nombre d'isomères, l'état de charge du plasma est le paramètre important et détermine si une transition atomique est résonante ou non. Ainsi, dans toute la suite de ce chapitre, l'état de charge moyen de chaque maille sera déterminé avec NOHEL2e en considérant la température électronique, la densité et la température radiative déterminées par Chivas. Cette démarche suppose donc que l'hydrodynamique (température, densité) ne soit pas fortement affectée par la valeur de l'état de charge moyen [Faj01].

Lorsque la densité du plasma est inférieure à 10^{-2} g/cm³, la résolution de l'ensemble des équations maitresses par NOHEL2e est difficile et le calcul ne converge pas. Dans ce cas là, l'état de charge est déterminé en réalisant une interpolation à partir des températures adjacentes pour lesquelles les calculs ont convergé. La détermination de l'état de charge moyen avec NOHEL2e sera limitée à des densités supérieures ou égales à 10^{-3} g/cm³. Cela n'aura pas de conséquence sur le nombre de noyaux excités par l'effet NEET. En effet, pour des densités inférieures à 10^{-3} g/cm³, le plasma est à l'équilibre coronal : les ions n'étant globalement pas dans des états excités, l'effet NEET y est ainsi peu probable.

A la fin du calcul hydrodynamique, pour chaque pas de temps et pour chaque maille de la cible, les caractéristiques thermodynamiques suivantes sont données :

- la température électronique, ionique et radiative (T_e , T_i et T_r),
- les densités ionique et électronique (n_i et n_e),
- l'état de charge moyen \overline{Q} déterminé par NOHEL2e,
- la vitesse \vec{v} ,
- ...

La description de l'évolution des conditions thermodynamiques d'une cible soumise à une impulsion laser est un problème complexe. Ainsi, il faut garder un regard critique vis-à-vis des résultats quantitatifs des simulations présentées dans les parties suivantes. Rappelons que l'enjeu est de déterminer un ordre de grandeur du nombre d'isomères que l'on peut produire dans un tir laser pour s'assurer de la faisabilité ou non d'une expérience de mise en évidence de l'excitation nucléaire par effet NEET dans les plasmas produits par laser.

3.2 Estimation du nombre d'isomères à la fin de l'impulsion laser

Le paramètre important pour l'effet NEET est d'atteindre les états de charge qui ont des transitions résonantes avec la transition nucléaire. Dans le cas du ²⁰¹Hg, les états de charge résonants sont situés autour de 42^+ et 50^+ . En effet, dans le chapitre précédent, nous avons montré que le taux d'excitation nucléaire était maximum pour deux régions en état de charge : une première région, située autour de l'état de charge moyen 42^+ où les transitions atomiques $6s_{1/2}$ - $4s_{1/2}$ et $6p_{3/2}$ - $4p_{1/2}$ sont résonantes et une deuxième région, située autour de l'état de charge moyen 50^+ avec les transitions $6p_{1/2}$ - $4p_{3/2}$ et $6p_{3/2}$ - $4p_{3/2}$.

Avant toute chose, il est important d'avoir un ordre de grandeur de l'intensité laser nécessaire pour atteindre ces états de charge. Dans le modèle collisionnel-radiatif de Colombant et Tonant [Col73], l'ionisation moyenne d'un plasma peut être déduite à partir des relations suivantes :

$$T_e \approx 5,2 \times 10^{-6} Z^{1/5} [\lambda^2 I]^{3/5}$$

$$\bar{Q} \approx \frac{2}{3} (Z T_e)^{1/3} \quad (3.12)$$

avec T_e [eV] la température électronique, Z le numéro atomique de l'élément, λ [μm] la longueur d'onde du laser et I [W/cm^2] son intensité. Pour un laser de longueur d'onde 1,06 μm et une intensité laser de 10^{14} W/cm^2 sur une cible de mercure ($Z=80$), la température électronique obtenue par l'équation (3.12) est de 3,4 keV soit un état de charge moyen de 43^+ . Ce modèle ne tient pas compte du refroidissement du plasma dû à son expansion ou à l'émission de rayonnement. Ainsi, la température électronique est généralement surestimée. Cependant, cela permet de donner une indication sur l'intensité nécessaire pour obtenir les conditions favorables pour l'excitation du mercure 201. De plus, dans la littérature, des états de charge jusqu'à 52^+ ont été mesurés sur l'or ($Z=79$ comparé à $Z=80$ pour le mercure) par spectrométrie X pour des intensités de l'ordre de 10^{14} W/cm^2 [BA86, Bus85].

L'estimation du nombre d'isomères que l'on peut former à la fin d'une impulsion laser, est réalisée en couplant une cartographie de taux NEET avec les résultats du code hydrodynamique dans lequel l'état de charge moyen est déterminé en postprocesseur par NOHEL2e. Les plasmas produits par laser ont des gammes de température et de densité très larges. Ainsi, pour réduire les temps de calculs, les taux NEET sont calculés dans le modèle de l'AMG à l'ETL. Nous montrerons ainsi que 7×10^7 isomères peuvent être formés lors d'une interaction laser à 2×10^{14} W/cm^2 dont 2×10^7 sont produits dans les régions du plasma où les calculs de taux NEET avec l'AMG sont pertinents. L'influence d'une physique atomique HETL sur la quantité d'isomères produite sera estimée dans une dernière partie.

3.2.1 Couplage du code Chivas avec les taux d'excitation par effet NEET

Dans la suite de l'étude nous allons nous intéresser à une impulsion laser ayant les caractéristiques suivantes : une énergie de faisceau de 80 J à une longueur d'onde de 1,05 μm , une structure temporelle en forme de créneau de 4 ns de durée et une tache focale de l'ordre de 100 μm de diamètre. L'intensité sur cible est alors de 2×10^{14} W/cm^2 . La cible est une cible pure de ^{201}Hg .

La figure 3.4 présente le profil de la température électronique et de la densité en fonction du rayon de détente, 2 nanosecondes après le début de l'impulsion laser sur la cible. A $t=0$, la cible de mercure est placée aux abscisses (on parle de rayon) comprises entre 0 et 72 μm . Le laser est incident sur la face de rayon 72 μm . Les températures électroniques maximales atteintes sont comprises entre 1 keV et 1,3 keV. Les différentes régions présentées dans la partie précédente peuvent être identifiées : la zone de conversion, située entre 70-80 μm , la couronne au-delà de 80 μm et la zone de ré-émission, située entre 60 et 70 μm . En ce qui concerne l'état de charge moyen, le code NOHEL détermine un état de charge moyen maximum de 50^+ contre $41\text{-}42^+$

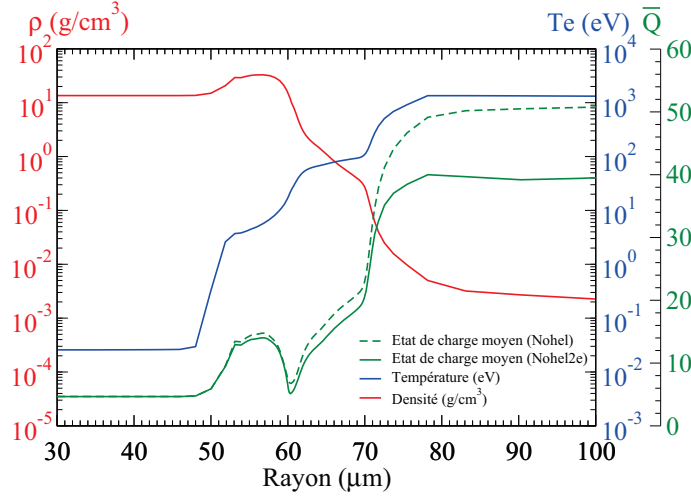


FIGURE 3.4 – Profil de la température électronique (en bleu), de la densité (en rouge) et de l'état de charge moyen (Nohel et NOHEL2e) en fonction du rayon de détente pour une cible de mercure, 2 ns après le début de l'impulsion laser. Les caractéristiques laser sont données dans le texte.

dans le cas de NOHEL2e. Dans la suite de l'étude on ne s'intéressera plus qu'aux états de charge calculés avec NOHEL2e.

3.2.2 Calcul du nombre d'isomères produits à la fin de l'impulsion laser

La détermination du nombre de noyaux excités nécessite de coupler les calculs de taux NEET avec les résultats du calcul hydrodynamique. Le nombre total d'isomères se calcule par la relation suivante :

$$N_{iso} = \int_t \int_{V_p(t)} \lambda_{NEET}(\rho(\vec{r},t), \bar{Q}(\vec{r},t)) n_{(\vec{r},t)}^{Hg} d\vec{r} dt \quad (3.13)$$

L'intégrale est effectuée sur le temps et sur le volume occupé par le plasma, noté V_p , à l'instant t , λ_{NEET} est le taux NEET et le nombre de noyaux de mercure par cm^3 , noté n^{Hg} , est déterminé par :

$$n_{(\vec{r},t)}^{Hg} = \rho(\vec{r},t) \frac{\mathcal{N}_A}{M_A} \quad (3.14)$$

avec ρ la densité du plasma, \mathcal{N}_A le nombre d'Avogadro et M_A la masse molaire du mercure. On discrétise la relation précédente afin de l'appliquer sur le calcul hydrodynamique :

$$N_{iso} \approx \sum_{t_i}^{t_{max}} \sum_{k=1}^{k_{max}} \lambda_{NEET}(\rho_{(k,t_i)}, \bar{Q}_{(k,t_i)}) n_{(k,t_i)}^{Hg} V_{(k,t_i)} \Delta t_i \quad (3.15)$$

où la première somme porte sur le temps, la deuxième sur le nombre de mailles, le volume de la maille k est noté V_k et Δt_i est l'intervalle entre deux pas de temps du calcul. Dans la suite, l'intégration est faite toutes les 10 picosecondes.

Dans le code hydrodynamique, la physique atomique est HETL. Les valeurs du taux NEET que nous allons utiliser sont celles déterminées à l'ETL par le modèle AMG. Afin de pallier à ces différences, les taux NEET sont appliqués à la simulation hydrodynamique à l'aide de la méthode dite de la température d'ionisation [Bus82, Bus93]. Cette méthode, bien qu'imparfaite, est un premier pas pour prendre en compte les effets hors équilibre à travers la détermination de l'état de charge (calculé ici avec NOHEL2e). Elle suppose que les populations des couches sont à l'équilibre thermodynamique à la température T_Z et non solution de l'équation maîtresse 3.4. Des corrections sont alors nécessaires pour prendre en compte au moins partiellement des différences de populations.

3.2.2.1 La méthode de la température d'ionisation

La méthode de la température d'ionisation consiste à utiliser pour un couple (T_e^{HETL}, ρ) donné, la valeur du taux NEET, calculée à l'ETL à la température d'ionisation T_Z , tel que :

$$\overline{Q}_{ETL}(T_Z, \rho) = \overline{Q}_{HETL}(T_e^{HETL}, \rho) \quad (3.16)$$

La figure 3.5 présente la variation de l'état de charge moyen en fonction de la température pour un calcul à l'ETL et NOHEL2e HETL à 10^{-2} g/cm³. Par exemple, une température T_e^{HETL} de 1 keV donne un état de charge moyen de 39⁺. Le même état de charge moyen est obtenu à l'ETL pour une température T_Z de 0,200 keV. Ainsi, dans cet exemple, le taux NEET ETL doit être pris à la valeur correspondante au couple (T_Z, ρ) . Pour obtenir le taux NEET HETL à la température de 1 keV, il faut prendre le taux NEET ETL à la température de 0,2 keV.

Cette correction ne tient pas compte de modifications éventuelles des populations N_k^Q pour un état de charge donné. Ceci sera discuté en fin de partie.

3.2.2.2 Estimation à 2×10^{14} W/cm²

Compte tenu des caractéristiques laser considérées en début de partie, l'intensité sur cible est de 2×10^{14} W/cm². La cible de mercure est divisée en 200 mailles dont l'épaisseur suit une progression géométrique. Le faisceau laser est incident du côté de la maille numéro 200. L'épaisseur initiale de la cible est de 72 μ m.

Nous avons vu dans le Chapitre 1, que l'effet NEET est un phénomène dynamique dont le taux maximum est atteint pour un temps τ_∞ qui dépend des largeurs des états (cf. Partie 1.3.2). A des densités de 10^{-2} g/cm³, la largeur collisionnelle totale est de l'ordre de 10-20 meV. Le temps nécessaire pour que la probabilité NEET atteigne sa valeur asymptotique est ainsi de l'ordre de 3×10^{-14} s. Durant une interaction laser en régime nanoseconde, la physique atomique est stationnaire pendant une

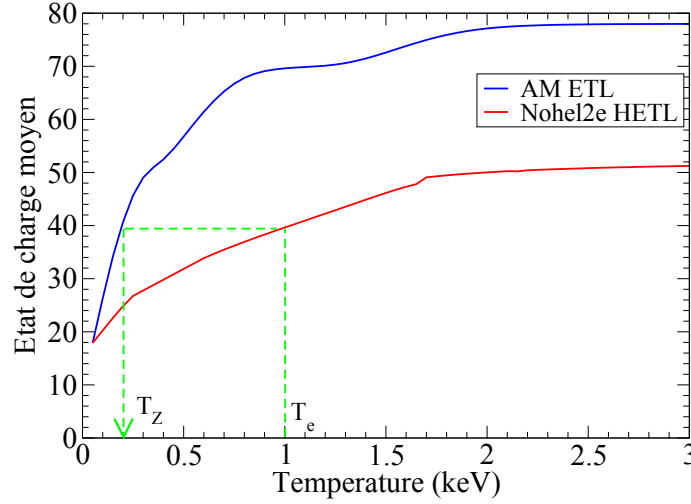


FIGURE 3.5 – Variation de l'état de charge moyen en fonction de la température entre l'AM ETL et NOHEL2e HETL. En vert est représentée la méthode de la température d'ionisation.

dizaine de picosecondes : la probabilité NEET a donc le temps d'atteindre sa valeur asymptotique correspondant aux taux calculés dans le chapitre précédent.

Le nombre d'isomères est calculé pour des densités de plasma comprises entre 10^{-3} et 1 g/cm^3 . On suppose que pour les densités inférieures à 10^{-3} g/cm^3 , les ions ont atteint l'équilibre coronal et les configurations électroniques étant alors majoritairement dans leur configuration fondamentale, l'effet NEET y est peu probable. Pour une cible pure de ^{201}Hg , à la fin de l'impulsion laser, le nombre d'isomères produit est de :

$$N_{iso} = 7 \times 10^7 \text{ isomères} \quad (3.17)$$

La figure 3.6 présente le nombre d'isomères cumulé en fonction du temps. La quantité de noyaux excités augmente rapidement durant les deux premières nanosecondes et atteint ensuite une valeur asymptotique à la fin de l'impulsion laser.

Le nombre d'isomères donné en (3.17), doit être corrigé pour ne prendre en compte que les noyaux excités dans les régions thermodynamiques où l'AMG est pertinent (cf. Chapitre 2) : c'est-à-dire lorsque le plasma a une densité supérieure à 10^{-2} g/cm^3 et l'état de charge moyen des ions est centré sur 42^+ . Pour déterminer si ces conditions sont remplies, nous allons caractériser les régions thermodynamiques où les isomères sont produits. La figure 3.7 présente le nombre d'isomères produits dans chaque maille ramené au nombre de noyaux de la maille, et ce à la fin de l'impulsion laser. Les mailles situées autour de la maille 170 sont celles pour lesquelles la probabilité de générer un isomère est maximale. Ce nombre diminue ensuite lorsque le numéro de la maille diminue. Les noyaux des mailles inférieures à la maille 90 ne peuvent pas être excités car les états de charge résonants ($\bar{Q} \geq 40^+$) n'ont pas été atteint.

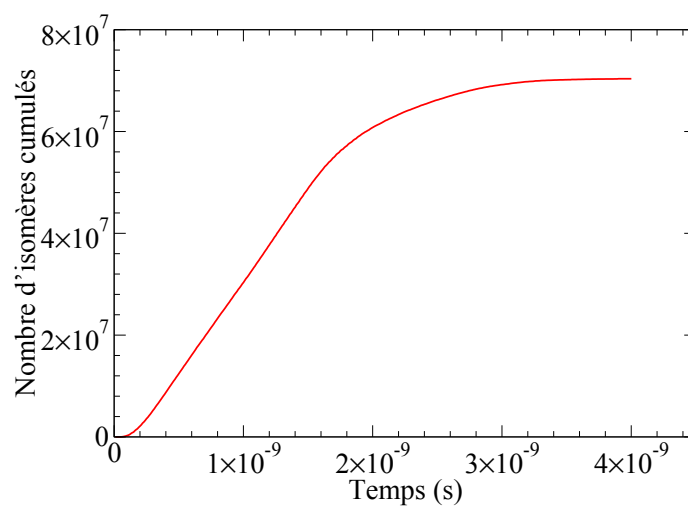


FIGURE 3.6 – Variation du nombre d'isomères cumulé en fonction du temps.

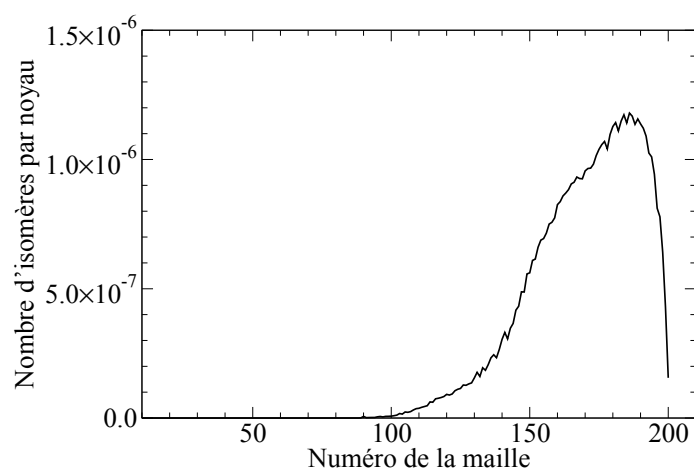


FIGURE 3.7 – Nombre d'isomères cumulé produits pour chaque maille ramené au nombre de noyaux dans la maille, à la fin de l'impulsion laser.

La figure 3.8 présente la variation de la densité, de la température et de l'ionisation moyenne en fonction du temps pour les mailles 180, 140 et 110. Comme il a été dit précédemment, la détermination de l'état de charge moyen par NOHEL2e est réalisée uniquement pour des densités supérieures à 10^{-3} g/cm³. Selon la maille, la température électronique maximale atteinte est différente et décroît en fonction de la profondeur de pénétration dans la cible. Elle est de 1,8 keV pour la maille 180 et diminue à un peu plus de 1 keV pour la maille 110. L'état de charge moyen maximum suit le même comportement, il atteint 45^+ pour la maille 180 et atteint tout juste les 40^+ pour la maille 110. A titre indicatif, à la fin de l'impulsion laser, l'énergie cinétique des ions dans ces mailles est de l'ordre de quelques centaines de keV (figure 3.9).

La figure 3.10 présente en a), la quantité d'ions qui sont passés par les différents états de charge moyen et en b) le nombre d'isomères produits à chaque valeur de l'état de charge moyen de la maille. Typiquement, environ 10^{14} noyaux passent par chaque degré de charge. Les états de charge 50^+ sont atteints à des densités inférieures à 10^{-2} g/cm³.

Le nombre d'isomères qui a été produit à chaque état de charge est représenté sur la figure 3.10 b). Deux zones de production sont présentes qui correspondent aux états de charge moyen résonants : une centrée sur l'état de charge moyen 42^+ et une autre centrée sur 50^+ . En ne considérant que l'excitation isomérique réalisée pour des états de charge moyens compris entre 38^+ et 45^+ et à des densités de plasma supérieures à 10^{-2} g/cm³ (courbe rouge de la figure 3.10b), on obtient un nombre de noyaux excités (pour une cible pure de ^{201}Hg) de :

$$\boxed{N_{iso}(\text{avec conditions}) = 2 \times 10^7 \text{ isomères}} \quad (3.18)$$

Ainsi, 29% des isomères sont produits dans les régions de densités supérieures à 10^{-2} g/cm³ dont l'état de charge moyen est centré sur 42^+ et pour lesquels les calculs AMG ont été validés. Cette valeur est ainsi une valeur minorante du nombre d'isomères.

On définit la probabilité moyenne qu'un noyau soit excité, \overline{P}_{exc} par le rapport entre le nombre de noyaux excités sur le nombre total de noyaux :

$$\overline{P}_{exc} = \frac{N_{iso}}{N_{noy}} \quad (3.19)$$

La quantité d'isomères produits dans les conditions thermodynamiques, ($38 \leq \overline{Q} \leq 45$ et $\rho \geq 10^{-2}$ g/cm³), est de $N_{iso}=2 \times 10^7$. Le nombre de noyaux qui sont passés dans ces conditions est de $N_{noy}=4,6 \times 10^{14}$. La probabilité moyenne d'excitation pour les ions de cette gamme d'état de charge est donc de $4,3 \times 10^{-8}$.

3.2.2.3 Variation avec l'intensité laser

On étudie maintenant la variation du nombre d'isomères avec l'intensité laser. La variation de l'intensité laser est réalisée en modifiant uniquement l'énergie du faisceau

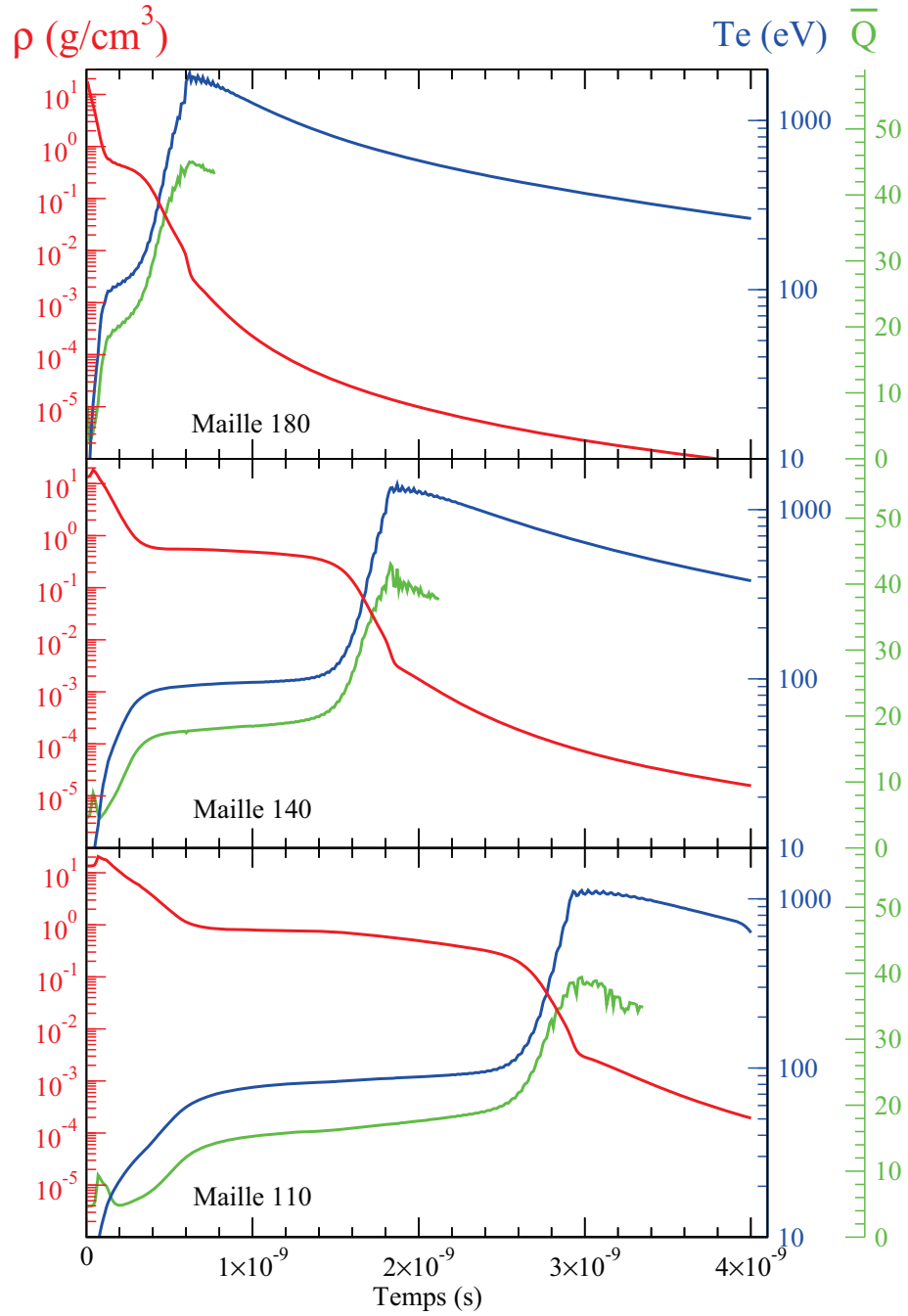


FIGURE 3.8 – Variation de la densité (en rouge), de la température en eV (en bleu) et de l'état de charge moyen (en vert) en fonction du temps pour les mailles 180, 140 et 110. L'état de charge est calculé en postprocesseur par NOHEL2e pour des densités supérieures à 10^{-3} g/cm^3 .

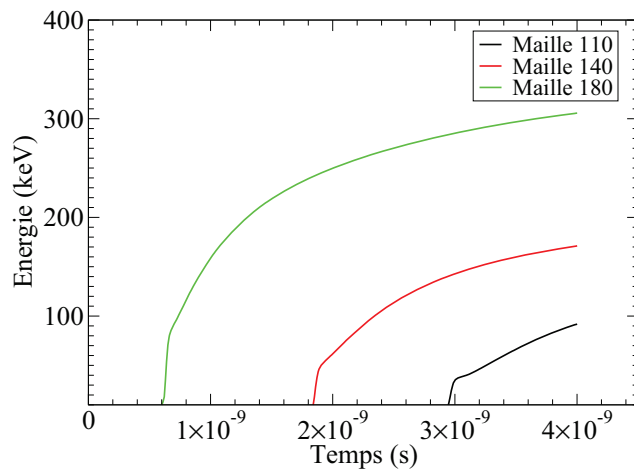


FIGURE 3.9 – Variation de l'énergie cinétique des ions dans les mailles 180, 140 et 110 en fonction du temps.

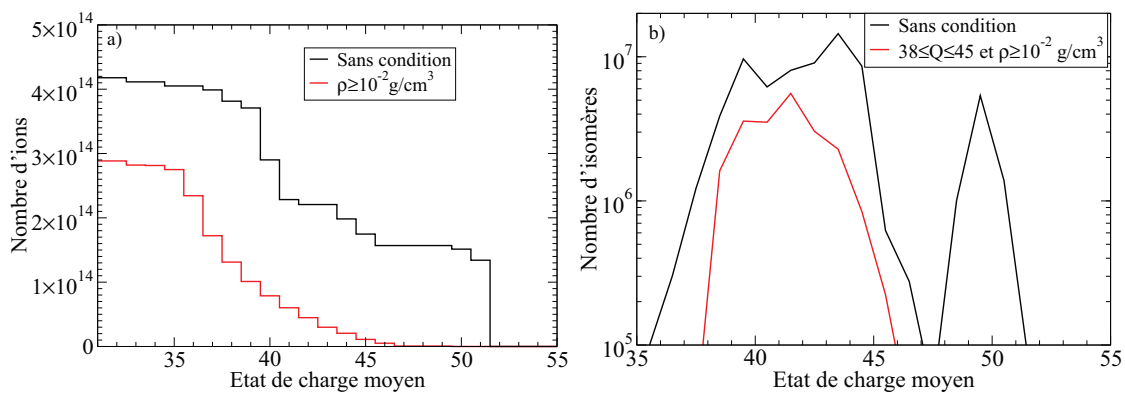


FIGURE 3.10 – Nombre d'isomères en fonction de l'état de charge moyen avec et sans condition thermodynamique (courbe rouge et noire respectivement).

laser. On conserve donc la durée d'impulsion de 4 ns et une tache focale de 100 μm de diamètre. La figure 3.11, résume le nombre d'isomères produits pour différentes intensités laser pour des calculs avec et sans condition (s et sc respectivement) sur l'état de charge moyen et la densité.

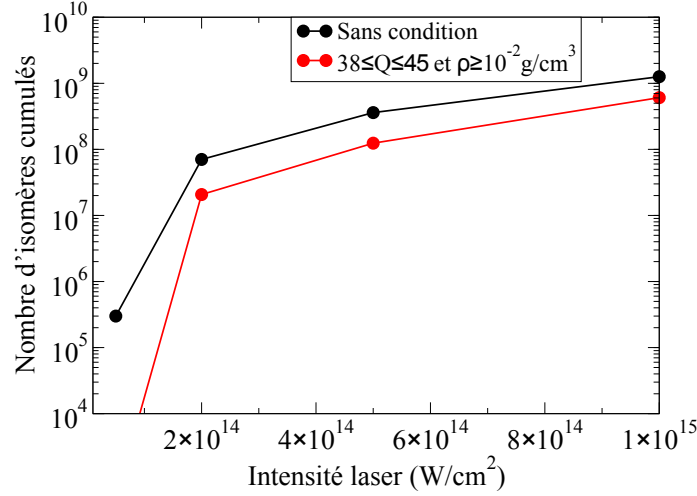


FIGURE 3.11 – Variation du nombre d'isomères en fonction de l'intensité laser avec et sans condition thermodynamique du plasma.

Le nombre d'isomères par micromètre ablaté croît avec l'intensité laser. En effet, plus l'intensité laser est grande, plus la quantité de matière ablatée augmente. La figure 3.12 représente le nombre d'isomères en fonction du rayon initial de la cible pour les différentes intensités laser. L'épaisseur de cible où règnent les conditions favorables pour l'excitation nucléaire est de 500 nm à 2×10^{14} W/cm² et de 2 μm à 10^{15} W/cm². La quantité d'isomères produite n'est ainsi pas linéaire avec l'épaisseur de cible où l'excitation a lieu mais dépend des conditions de température et de densité qui y règnent.

La figure 3.13 présente le profil en densité et état de charge moyen en fonction du rayon, 2 ns après le début du tir laser pour différents éclaircissements. A une intensité de 2×10^{14} W/cm², l'état de charge 40-42⁺ est atteint pour des densités de l'ordre de 10^{-2} g/cm³. Par ailleurs à 10^{15} W/cm², il est produit à des densités aux alentours de 3×10^{-2} g/cm³. Plus l'intensité augmente plus les isomères sont produits dans les régions de haute densité. A 10^{15} W/cm², tous les isomères sont produits à des densités supérieures à 10^{-2} g/cm³ où les taux NEET calculés par l'AMG sont pertinents.

Le tableau 3.1 montre la probabilité d'excitation moyenne lorsque les noyaux sont excités dans les conditions thermodynamiques pertinentes pour l'AMG ($38 \leq \overline{Q} \leq 45$

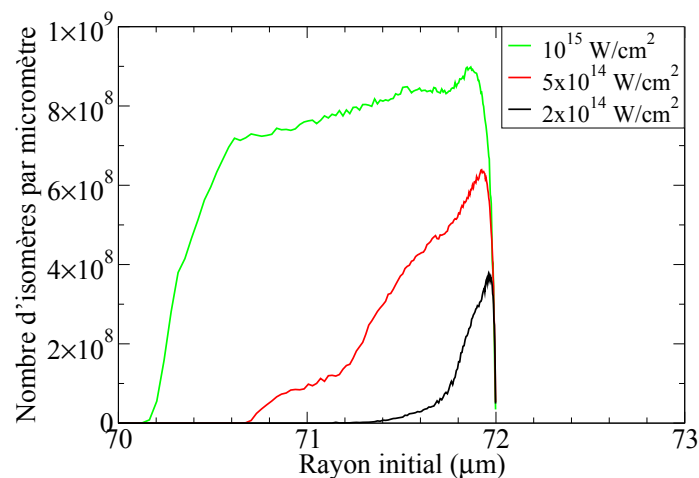


FIGURE 3.12 – Nombre d'isomères par micromètre en fonction du rayon initial de la cible.

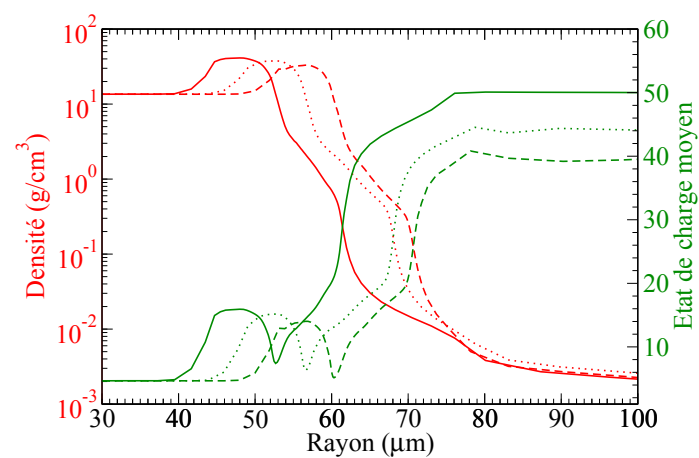


FIGURE 3.13 – Profil de densité (en rouge) et état de charge moyen (en vert) en fonction du rayon pour 3 intensités laser : 2×10^{14} W/cm² (tirets), 5×10^{14} W/cm² (pointillés) et 10^{15} W/cm² (trait plein).

et $\rho \geq 10^{-2}$ g/cm³) pour les différentes intensités laser. La probabilité d'excitation moyenne croît avec l'intensité laser. Lorsque l'intensité augmente, les états de charge sont atteints dans des régions de plasma de plus en plus dense. Le taux d'excitation nucléaire y est donc plus important.

Intensité (W/cm ²)	N_{noy}^c	N_{iso}^c	\overline{P}_{exc}
2×10^{14}	$4,6 \times 10^{14}$	2×10^7	$4,3 \times 10^{-8}$
5×10^{14}	$1,7 \times 10^{15}$	$1,2 \times 10^8$	7×10^{-8}
1×10^{15}	$3,8 \times 10^{15}$	$6,1 \times 10^8$	$1,6 \times 10^{-7}$

TABLEAU 3.1 – Détermination de la probabilité d'excitation moyenne par effet NEET pour les trois intensités laser dans les conditions thermodynamiques où les calculs AMG sont pertinents ($38 \leq \overline{Q} \leq 45$ et $\rho \geq 10^{-2}$ g/cm³).

La quantité d'isomères produite durant l'interaction a été déterminée à partir des taux NEET calculés à l'ETL. Comme nous l'avons signalé dans le paragraphe 3.2.2.1, la prise en compte des effets HETL sur le taux d'excitation est rudimentaire et est effectuée au moyen de la température d'ionisation. Il faut alors estimer l'incertitude introduite par cette approximation sur le nombre d'isomères calculé.

3.2.2.4 Estimation de l'influence d'une physique atomique HETL sur le nombre d'isomères

Pour une transition atomique $\alpha \rightarrow \beta$ donnée, le taux NEET dans le modèle de la température d'ionisation est déterminé par l'expression :

$$\overline{\lambda}_{\alpha \rightarrow \beta}^{NEET}(T_e) = \frac{2\pi}{\hbar} \overline{N}_{\alpha}(T_z) \left(1 - \overline{P}_{\beta}(T_z)\right) |\overline{W}_{\alpha\beta}(T_z)|^2 \frac{1}{\sqrt{2\pi}\sigma_{corr}(T_z)} \exp\left(-\frac{\overline{\delta}_{\alpha \rightarrow \beta}^2(T_z)}{2\sigma_{corr}^2(T_z)}\right) \quad (3.20)$$

avec T_Z la température qui permet de vérifier l'égalité (3.16), et T_e la température HETL.

Si la valeur de l'élément de matrice de couplage $\overline{W}_{\alpha\beta}$ peut être déduite à l'aide de la température d'ionisation (même état de charge moyen), les populations des couches ne peuvent être quant à elles raisonnablement obtenues en supposant l'équilibre thermodynamique. Pour une transition $\alpha \rightarrow \beta$ donnée, nous allons faire l'hypothèse que la différence entre un taux NEET ETL et HETL est principalement due au terme $\overline{N}_{\alpha}(1 - \overline{P}_{\beta})$ qui dépend de la population de l'orbitale atomique initiale et finale. Pour simplifier les notations, on pose $\Theta_{\alpha\beta} = \overline{N}_{\alpha}(1 - \overline{P}_{\beta})$.

La figure 3.14 présente la comparaison des termes Θ_{64}^{ETL} et Θ_{64}^{HETL} calculés à partir de la population moyenne des couches $n = 6$ et $n = 4$ pour des densités de plasma de a) 10^{-3} , b) 10^{-2} et c) 5×10^{-2} g/cm³. Les valeurs HETL sont issues des codes NOHEL2e et AVERROES. La figure 3.14 d) présente le rapport R défini

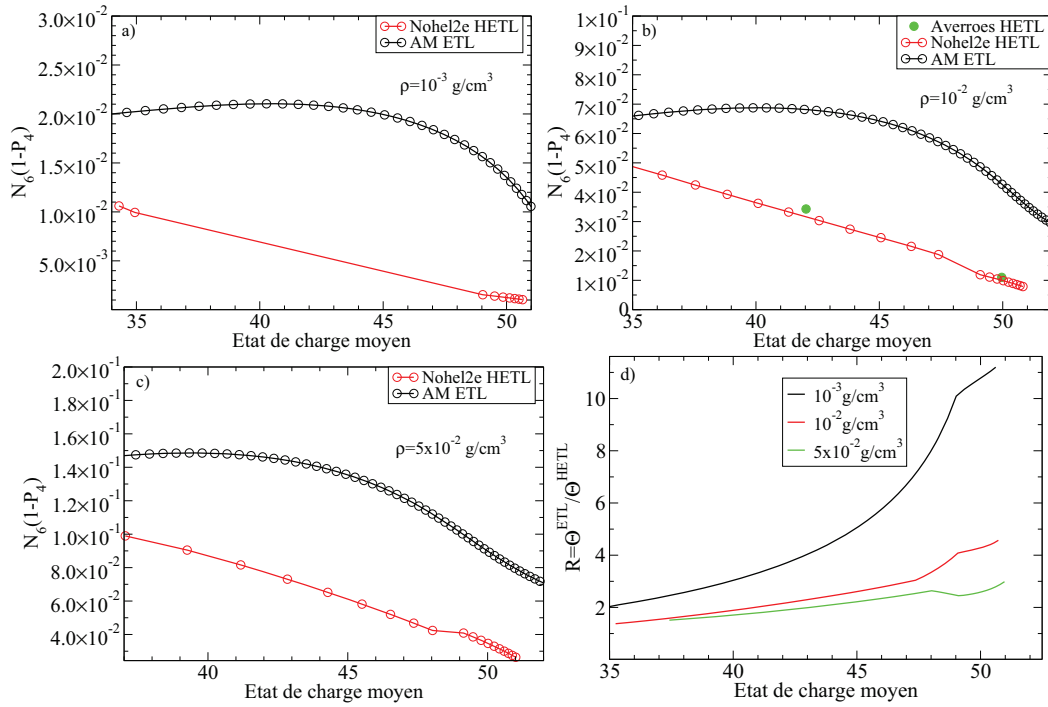


FIGURE 3.14 – Comparaison du terme $\Theta_{64} = N_6(1-P_4)$ entre un modèle d'atome-moyen à l'ETL et les modèles HETL NOHEL2e et AVERROES pour des densités de a) 10^{-3} g/cm^3 , 10^{-2} g/cm^3 et $5 \times 10^{-2} \text{ g/cm}^3$. La figure d) présente l'évolution du rapport $R = \Theta_{64}^{\text{ETL}} / \Theta_{64}^{\text{HETL}}$ en fonction de l'état de charge moyen.

comme $R = \Theta^{ETL}/\Theta^{HETL}$. A 10^{-3} g/cm³, NOHEL2e n'ayant pas convergé entre les états de charge moyen 35⁺ et 49⁺, les valeurs de Θ sont interpolées. La valeur du rapport R à cette densité est estimée à environ 3,5 pour un état de charge moyen de 42⁺. A 10^{-2} g/cm³, l'accord entre NOHEL2e et AVERROES sur la valeur de Θ_{64} est très bon. A un état de charge de 42⁺, la valeur de R est de 2,1. Le taux NEET HETL est donc plus faible de 2,1 par rapport au taux NEET ETL. A 5×10^{-2} g/cm³, la valeur de R est de 1,9 pour $\overline{Q}=42^+$. Lorsque la densité augmente, le rapport R diminue pour tendre vers 1 : le plasma se rapproche d'un plasma ETL.

Ainsi, on peut supposer que le nombre d'isomères déterminé avec les conditions thermodynamiques où les calculs de taux NEET obtenus avec l'AMG sont pertinents, sont au maximum d'un facteur 2 plus faibles. Le tableau 3.2 résume donc les valeurs du nombre d'isomères, avec une estimation de l'influence de la physique atomique HETL. Pour une intensité laser cinq fois plus grande, le nombre d'isomères a été multiplié par 30 et la probabilité d'excitation est quatre fois plus importante.

Intensité (W/cm ²)	N_{noy}^c	N_{iso}^{HETL}	P_{exc}^{HETL}
2×10^{14}	$4,6 \times 10^{14}$	1×10^7	$2,2 \times 10^{-8}$
5×10^{14}	$1,7 \times 10^{15}$	6×10^7	$3,5 \times 10^{-8}$
1×10^{15}	$3,8 \times 10^{15}$	3×10^8	$7,8 \times 10^{-8}$

TABLEAU 3.2 – Estimation de la probabilité d'excitation moyenne HETL par effet NEET pour les trois intensités laser dans les conditions thermodynamiques où les calculs atome-moyen sont pertinents ($38 \leq \overline{Q} \leq 45$ et $\rho \geq 10^{-2}$ g/cm³).

3.2.3 Discussion des résultats

Comme nous l'avons dit précédemment les calculs présentés dans cette partie ont pour enjeu de déterminer un ordre de grandeur du nombre d'isomères produit par tir laser.

La description de la thermodynamique d'une cible soumise à une impulsion laser est un problème complexe. Elle dépend de nombreux paramètres dont l'un des principaux est la valeur du coefficient de flux limite (équation 3.9). Ce coefficient permet de limiter la conduction électronique qui joue directement un rôle sur la masse de matière ablatée et, a fortiori, sur le nombre d'isomères produits. En effet, plus le coefficient de flux limite est élevé, plus la conduction thermique est favorisée, plus la transmission de l'énergie vers les mailles profondes est importante. Typiquement le nombre d'isomères peut changer d'un facteur 5, selon la valeur du flux limite considérée (comprise entre 0,08 et 0,3 [Dau93]).

Par ailleurs le calcul du taux NEET a été effectué avec le modèle de l'atome-moyen gaussien. Nous nous sommes assurés que le calcul du nombre d'isomères était pertinent. Nous avons montré dans le chapitre précédent, que le taux NEET fluctue faiblement autour de la valeur obtenue avec un modèle d'atome-moyen. Pour un état

de charge moyen de 42^+ à 10^{-2} g/cm³, nous avons mis en évidence que l'écart à la moyenne n'est que d'un facteur 2 sur le taux NEET (cf. Chapitre 2), ce qui n'affecte pas les ordres de grandeur du nombre d'isomères obtenu dans ce chapitre.

Ainsi, en tenant compte des incertitudes des méthodes de calcul, le nombre d'isomères est susceptible d'être supérieur à 10^6 par tir laser à 2×10^{14} W/cm². Nous allons nous baser sur ce nombre pour dimensionner une expérience.

3.3 Conclusion du chapitre

Dans ce chapitre, nous avons estimé le nombre d'isomères formés à l'issue d'un tir laser. La détermination du nombre de noyaux excités nécessite de coupler une cartographie du taux NEET avec un code hydrodynamique. Les taux d'excitation par effet NEET ont été calculés dans le modèle de l'AMG à l'ETL et couplés au code hydrodynamique par la méthode de la température d'ionisation. Les résultats ont montré qu'à une intensité de 2×10^{14} W/cm², 10^7 isomères sont formés à la fin de l'impulsion laser. Compte tenu des incertitudes dues aux différents modèles utilisés, la valeur de 10^6 isomères est conservée pour le dimensionnement d'une expérience à cette intensité.

Une étude en fonction de l'intensité laser a été menée et a montré que la quantité de noyaux excités est de l'ordre de 10^8 isomères à 10^{15} W/cm². Lorsque l'intensité laser augmente, la proportion d'isomères formés dans les bonnes conditions thermodynamiques est plus importante car les états de charge d'intérêt ($38 \leq \overline{Q} \leq 45$) sont atteints dans les régions du plasma de plus en plus denses (3×10^{-2} g/cm³ à 10^{15} W/cm²).

Cette quantité d'isomères produite nous semble importante pour le développement d'un programme expérimental visant la mise en évidence de ces excitations dans un plasma de ²⁰¹Hg. Cependant, comme nous l'avons vu dans le Chapitre 1, la désexcitation de l'état isomérique du ²⁰¹Hg est réalisée préférentiellement par émission d'un électron d'énergie 762, 884 ou 988 eV. Le dispositif expérimental doit ainsi permettre la mesure de ces électrons. Pour une énergie de 80 J délivrée en 4 ns, le plasma rayonne quelques 10^{10} W, rendant toute détection durant quelques μ s après l'interaction difficile. Un dispositif expérimental permettant de s'affranchir du bruit de fond doit donc être élaboré.

Dispositif expérimental pour la mesure des états de charge asymptotiques dans un plasma produit par laser

Nous avons vu dans les chapitres précédents que l'excitation du ^{201}Hg par effet NEET est optimal pour des états de charge supérieurs à 42^+ dans le plasma. La détection d'électrons ayant une énergie cinétique de 800 eV signifierait son excitation (cf. Chapitre 1). Cependant, la demi-vie de l'état nucléaire est faible dans un atome faiblement ionisé (81 ns) et il paraît difficile d'assurer une détection immédiatement après l'interaction du laser avec la cible. En effet, cette interaction génère une forte émission de particules qui sature les détecteurs. Cependant, nous avons vu dans le chapitre 1, que la demi-vie du premier état nucléaire du ^{201}Hg augmente de plusieurs ordres de grandeur si l'état de charge de l'ion est suffisamment élevé. Ainsi, pour des états de charge supérieurs à 30^+ , la demi-vie de l'état nucléaire augmente jusqu'à quelques μs (voire la ms pour des états de charge supérieurs à 34^+). Il paraît alors possible de transporter les ions d'intérêt ($Q > 30^+$) loin de la cible. Une implantation des ions dans un collecteur permettrait éventuellement de détecter les électrons de conversion. Avant de réaliser une telle expérience il faut s'assurer que les conditions d'interaction laser matière nécessaires pour générer et transporter des ions multi-chargés loin de la cible sont atteintes. Les états de charge atteints loin de la cible seront appelés états de charge asymptotiques et font l'objet des mesures de ce chapitre.

Ainsi, le but de l'étude expérimentale présentée ici est de développer et caractériser un protocole expérimental pour mesurer les distributions en énergie et en état de charge (asymptotique) des ions formés en vue d' :

1. identifier l'installation requise pour atteindre des états de charge d'au moins 30^+ loin de la cible,
2. être prédictif sur le nombre d'isomères détectables sur cette installation.

4.1 Mesures des distributions d'ions dans leur état asymptotique et problèmes associés

4.1.1 Parabole Thomson ou déviateur électrostatique ?

Dans la littérature, une grande majorité des mesures des états de charge atteints loin de la cible lors d'une interaction laser est réalisée dans le cadre de la thématique des sources d'ions produits par laser (appelé LIS pour "Laser Ion Source"). L'utilisation des lasers ns pour la production d'ions permet d'atteindre des ions fortement chargés avec des courants ioniques importants [Lá03]. La mesure des états de charge asymptotiques est généralement effectuée via deux dispositifs : la parabole Thomson ou le déviateur électrostatique [Wor96].

Dans une parabole Thomson, les particules chargées sont déviées par une association de champ électrique et magnétique parallèles entre eux et perpendiculaires à la trajectoire des particules entrant dans la parabole. La détection des particules est habituellement réalisée à l'aide d'une galette de microcanaux (MCP) de grand diamètre et d'un écran photostimulable (aussi appelé écran phosphore). Un ion incident sur la MCP génère une cascade d'électrons qui sont ensuite guidés sur l'écran phosphore. La lumière émise par l'écran phosphore est ensuite guidée vers une caméra CCD à l'aide de fibres optiques. Les particules forment alors des structures paraboliques et les coordonnées des points d'impact sur l'écran phosphore dépendent des valeurs des champs électrique et magnétique mais aussi de la masse de l'ion, de son énergie cinétique et de son état de charge. Ce dispositif permet d'obtenir à l'issue d'un seul tir laser, toutes les caractéristiques des ions émis lors de l'interaction laser. Cependant, la résolution de ce dispositif est faible. Par exemple, Woryna et al. [Wor96], ont montré qu'ils arrivaient à identifier des ions tantale jusqu'à des états de charge de 17^+ alors que l'état de charge maximum était de 53^+ . La parabole Thomson n'est ainsi pas adaptée pour notre étude car la résolution n'est pas suffisante pour séparer les états de charge supérieurs à 30^+ . Le déviateur électrostatique (appelé IEA dans la littérature pour "Ion Energy Analyzer" ou ESA pour "ElectroStatic Analyzer") a une meilleure résolution et a donc été retenu pour notre étude.

4.1.2 Déviateur électrostatique

Les déviateurs électrostatiques généralement utilisés ont une géométrie cylindrique [Wor96, Far13]. Ces déviateurs sont constitués de deux plaques incurvées (l'angle de déviation est couramment compris entre 90° et 180°), entre lesquelles est appliquée une différence de potentiel (figure 4.1).

Les plaques intérieure et extérieure ont respectivement un rayon de courbure R_1 et R_2 et sont portées aux potentiels V_1 et $V_2 = -V_1$. Il se forme alors entre les plaques un champ électrique radial $E_r(r)$ qui obéit à la relation suivante :

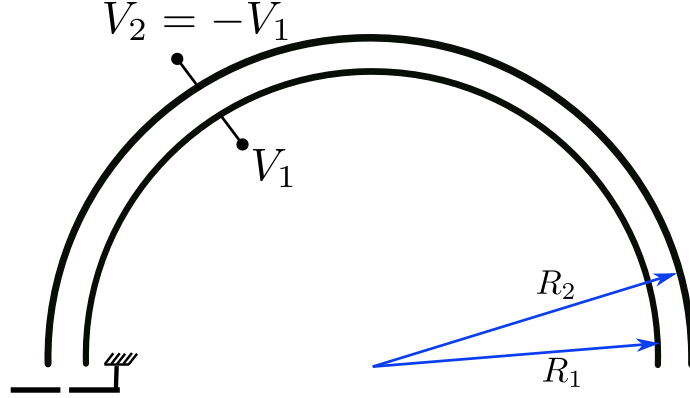


FIGURE 4.1 – Synoptique d'un déviateur électrostatique cylindrique dont l'angle de déviation est de 180° . La tension V_1 est négative afin de dévier les ions.

$$E_r(r) = \frac{U}{r \ln \frac{R_2}{R_1}} \text{ où } U = V_2 - V_1 \quad (4.1)$$

Considérons une particule de charge Qe , de masse m et de vitesse v qui se propage dans le déviateur avec une trajectoire circulaire de rayon $r = R_0$ où $R_0 = (R_1 + R_2)/2$. Dans le cas d'une trajectoire circulaire l'accélération a est centripète et vaut $a = v^2/R_0$. La force F est donnée par la force de Lorentz $F = eQE_r(R_0)$. Il s'ensuit :

$$\frac{mv^2}{R_0} = eQE_r(R_0). \quad (4.2)$$

Les ions n'étant pas relativistes, leur énergie cinétique est égale à $E = \frac{1}{2}mv^2$, l'expression précédente devient :

$$\frac{E}{Q} = \frac{eU}{2 \ln \frac{R_2}{R_1}} \approx \kappa eU \quad (4.3)$$

avec $\kappa = \frac{R_0}{2\Delta R}$ et $\Delta R = R_2 - R_1$. Pour une tension donnée U , ne sortent du déviateur que les ions ayant un même rapport énergie cinétique sur charge. Du fait de leur énergie cinétique différente, les ions d'états de charge différents qui atteignent la sortie du déviateur électrostatique sont séparés par temps de vol selon :

$$t = L\sqrt{\frac{m}{2E}} = L\sqrt{\frac{m}{2QeU\kappa}} \quad (4.4)$$

où t est le temps de vol nécessaire aux particules pour parcourir la distance L qui sépare la cible du détecteur et m la masse de l'ion. Ainsi, pour une tension donnée sur le déviateur, plus l'état de charge est grand, plus son énergie est grande donc plus le temps de vol est petit. En changeant pas à pas la tension de déviation U du

déviateur, on détecte les ions avec différents rapports E/Q et il est alors possible de construire la distribution en énergie cinétique des ions pour les différents états de charge. Afin de construire ces distributions, il faut réaliser un grand nombre de tirs laser et ces mesures nécessitent donc si possible un laser à haute cadence de tirs.

4.1.3 Le problème des effets de charge d'espace

Les courants ioniques importants qui sont atteints lors des expériences laser (de l'ordre de 10-100 mA/cm² à 10¹³ W/cm² à 50 cm de la cible) peuvent provoquer des effets de charge d'espace qui viennent modifier la transmission du déviateur électrostatique. Pour un faisceau de particules chargées, les particules créent leur propre champ électrique qui a tendance à éclater le faisceau dans les trois directions de l'espace. C'est la répulsion due à la charge d'espace. Cet effet va aussi perturber le potentiel local (par exemple le potentiel produit par les électrodes du déviateur) si la densité du faisceau est trop importante. Si on suppose que le faisceau est éclaté par les effets de charge d'espace seulement dans la direction perpendiculaire à sa direction de propagation alors le diamètre qu'il aurait après une distance parcourue z , peut être décrit par l'équation (4.5) [Hut67] :

$$\int_1^{R_B} \frac{dR}{\sqrt{\ln R}} = \frac{z}{r_e} \left(\frac{1}{2^{3/2} \pi \epsilon_0} \sqrt{\frac{m}{e}} \frac{j}{E^{3/2}} \right)^{1/2} \quad (4.5)$$

avec $R_B = r_s/r_e$ où r_e et r_s désignent respectivement le rayon du faisceau à l'entrée et à la sortie du déviateur, z désigne la longueur parcourue par le faisceau. Le courant du faisceau d'énergie cinétique $E[\text{eV}]$ est noté $j[\text{A}]$. Enfin, $m[\text{kg}]$ est la masse des particules. Cette équation est présentée dans le cas d'une propagation rectiligne du faisceau et n'est qu'une approximation dans le cas d'une propagation dans un déviateur cylindrique. En effet, dans ce dernier cas, l'effet du champ électrique doit être pris en compte. Cette équation va cependant nous servir à déterminer un ordre de grandeur. Par exemple, prenons un faisceau d'ions de tantale d'énergie cinétique de 1000 eV et de courant surfacique de 1 A/cm² qui entre dans un déviateur de longueur 30 cm par une fenêtre d'entrée circulaire de 0,5 mm de diamètre. On peut montrer que l'équation (4.5) est vérifiée pour $R_B = 37$. Ainsi, pour un diamètre initial de 0,5 mm en entrée, le diamètre du faisceau sera de 18,5 mm à la sortie du déviateur. Si l'écartement entre les plaques n'est pas suffisant, on peut imaginer que les ions ne soient pas tous transmis. Par ailleurs, ces effets de charge d'espace participent à la dispersion temporelle des ions d'état de charge et d'énergie cinétique donnés du fait des modifications de trajectoire.

Dans la littérature, des études ont montré l'influence de ces effets sur les distributions ioniques mesurées à la sortie du déviateur [Fle65] mais aussi sur sa transmission [Jin14] (transmission relative uniquement). Dans la référence [Gre70], T.S Green donne des conditions limites sur la densité du faisceau d'ions pour que les effets de charge d'espace puissent être négligés. Cette expression s'écrit :

$$n_i \leq 5 \times 10^8 \frac{E}{l^2 Q} \frac{w_{\text{sortie}}}{w_{\text{entrée}}} \quad (4.6)$$

où $n_i[\text{cm}^{-3}]$ est la densité du plasma, $w_{\text{sortie}}/w_{\text{entrée}}$ est le rapport entre la largeur de la fente de sortie et celle de l'entrée, $E[\text{keV}]$ est l'énergie des ions de charge Q , et $l[\text{cm}]$ est la distance de vol dans le déviateur. Par exemple, pour une énergie de 1 keV, un état de charge $Q=1^+$, un rapport entre les largeurs des fentes $w_{\text{sortie}}/w_{\text{entrée}} = 5$ et une distance de vol l de 30 cm, la densité doit être au maximum de $2,8 \times 10^6$ ions/cm³, ce qui correspond à un courant surfacique de $J=1,5 \mu\text{A}/\text{cm}^2$, pour que les effets de charge d'espace soient négligeables. Dans la suite lorsque nous parlerons des effets de charge d'espace, nous regrouperons à la fois la perturbation des lignes de champ et l'éclatement du faisceau dû à la répulsion coulombienne.

4.1.4 Le problème de la détection des paquets d'ions

La détection des ions en sortie du déviateur est généralement réalisée avec un multiplicateur d'électrons (appelée WEM pour "Window less Electron Multiplier") ou une galette de micro-canaux (appelée MCP pour "Micro Channel Plate") [Wor96]. La détermination du nombre d'ions en sortie du déviateur nécessite de connaître la fonction de réponse de ces détecteurs. Cependant, cette fonction de réponse est mal connue car elle dépend de nombreux paramètres : la masse de la particule, son énergie et son état de charge. Dans la littérature, la fonction de réponse de certains modèles de WEM et de MCP a été déterminée sous faisceau d'ions produits par un accélérateur [Kra98, Mro99]. En général, les distributions d'ions sont néanmoins reconstruites en unité arbitraire du fait de la méconnaissance de ces fonctions de réponse [Tor02].

4.1.5 Objectifs de ce travail

C'est en connaissant ces difficultés expérimentales qu'un déviateur électrostatique a été développé [Mau08]. Dans le cadre initial de mon travail de thèse, la démarche était séparée en deux étapes :

- développement et caractérisation du dispositif expérimental sur un laser Nd :Yag à une intensité de $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ au CENBG.
- mesures d'états de charge asymptotiques d'une cible d'or ($Z=79$) à $10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ sur une installation laser au CEA/DAM de Bruyères-le-Châtel.

Cependant, suite à des problèmes techniques liés à l'installation laser du CEA de Bruyères-le-Châtel, la deuxième étape n'a pas pu être réalisée. Seuls les résultats de la première étape seront présentés. Nous décrirons le dispositif expérimental utilisé et les différents éléments qui le composent. Ensuite, nous présenterons les mesures réalisées pour l'étude de la réponse du détecteur utilisé afin de quantifier le nombre

d'ions en sortie du déviateur. A l'issue des mesures de distributions d'ions à la sortie du déviateur, nous verrons que la transmission de notre dispositif est fortement limitée par les effets de charge d'espace à son entrée. Nous avons mis en place un protocole qui permet de quantifier la transmission après comparaison avec un signal intégré. Enfin, dans une dernière partie, nous discuterons des résultats de ces analyses et dégagerons des lois d'échelle qui permettront d'être prédictif sur les tensions du déviateur à utiliser pour construire les distributions en état de charge dans la gamme $[30^+-50^+]$ à plus haute intensité laser.

4.2 Description du dispositif expérimental

Le dispositif expérimental est constitué d'une chambre principale où se déroule l'interaction laser-cible, d'une chambre intermédiaire et de la chambre du déviateur électrostatique (figure 4.2). L'ensemble du dispositif est maintenu sous vide (10^{-5} mbar dans la chambre d'interaction, 10^{-6} mbar dans la chambre du déviateur) via un système de pompes primaires et secondaires. Un système constitué de deux tubes de petit diamètre (4 mm) situés à l'entrée et à la sortie de la chambre intermédiaire, permet de créer un vide différentiel entre la chambre d'interaction et la chambre du déviateur. Ce système permet d'éviter les remontées de pression dans la chambre du déviateur lors de l'ablation de la cible par le laser. Cette remontée de pression pourrait d'une part, endommager le détecteur d'ions et d'autre part, générer des variations du vide lors du transport des ions dans le déviateur.

L'impulsion laser est focalisée sur une cible solide avec un angle d'incidence de 45° à l'aide d'une lentille de focale 150 mm disposée à l'intérieur de la chambre d'interaction. Avant focalisation, le diamètre du faisceau est de 1 cm. La lentille est traitée anti-reflet ainsi 99% de l'énergie laser est transmise lors de sa traversée. Un isolateur de Faraday est disposé à la sortie du laser pour éviter qu'une portion du faisceau retourne dans la cavité laser lors de l'interaction du laser avec la cible. La laser est polarisé horizontalement (polarisation P).

Un collecteur de charge est disposé à l'entrée du vide différentiel et permet de déterminer si le laser est bien focalisé et de s'assurer de la reproductibilité des signaux tir à tir. Les cibles sont montées sur un porte-cible pouvant se déplacer dans les trois directions de l'espace. Après chaque tir laser, le porte-cible est déplacé de 1 mm pour disposer d'une cible lisse. Compte tenu des dimensions de la cible ($\approx 3 \times 7 \text{ cm}^2$), environ 1000 tirs peuvent être réalisés sur celle-ci.

L'entrée du déviateur électrostatique est située à 50 cm de la cible. Les ions qui sortent du déviateur sont détectés par un multiplicateur d'électrons (que nous appellerons WEM pour *Windowless Electron Multiplier*). L'étude de la réponse de ce détecteur sera décrite dans la prochaine partie (Partie 4.3).

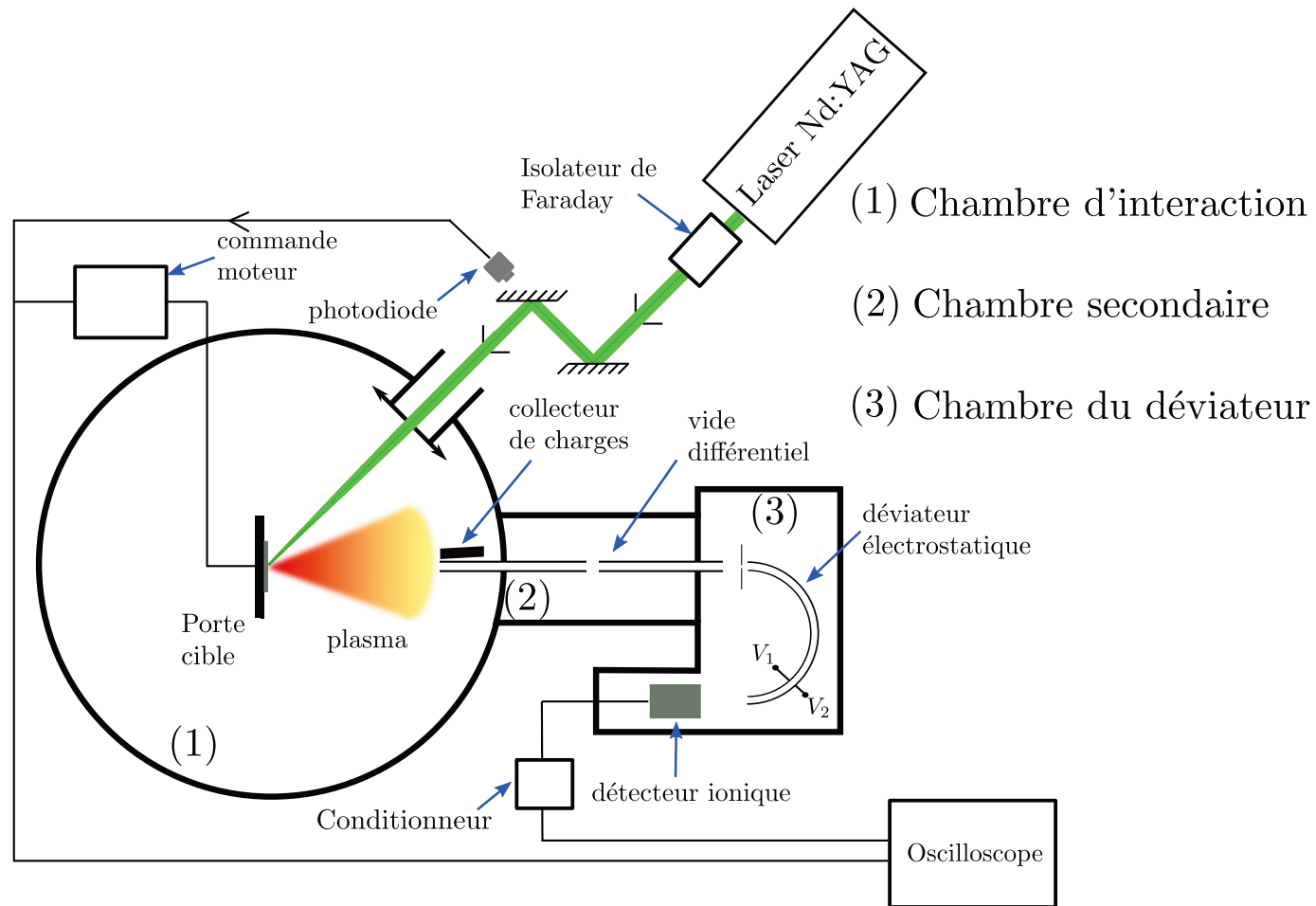


FIGURE 4.2 – Schéma du dispositif expérimental utilisé pour la détection des états de charge qui sont atteints loin de la cible.

L'acquisition des signaux des détecteurs (collecteur de charge, détecteur d'ions et photodiode) est réalisée à l'aide d'un oscilloscope avec une période d'échantillonnage du signal de 400 ou 800 ps. Une photodiode placée derrière les miroirs est utilisée pour déclencher l'acquisition de l'oscilloscope au moment du tir laser et pour commander le pilotage des moteurs de déplacement du porte-cible. La figure 4.3 présente des photographies du dispositif expérimental.



FIGURE 4.3 – Photographie du dispositif expérimental utilisé. (1) Miroir laser, (2) photodiode, (3) chambre d'interaction, (4) chambre du déviateur électrostatique, (5) lentille de focalisation, (6) cible, (7) collecteur de charge, (8) entrée du vide différentiel, (9) sortie du vide différentiel, (10) déviateur électrostatique, (11) emplacement du détecteur de temps de vol.

4.2.1 Laser

Le laser utilisé au CENBG pour tester le dispositif expérimental est un laser Nd :YAG (acronyme du nom anglais *Neodymium-doped yttrium aluminium garnet*) de chez Continuum¹. Il délivre un faisceau de 1,3 J répartis sur une impulsion gaussienne de largeur à mi-hauteur de 9,2 ns. Il peut fonctionner à une fréquence maximale de 10 Hz ou en mode mono coup. Dans le cas d'une impulsion laser gaussienne et d'une tache focale supposée gaussienne, l'intensité laser I se calcule par [Har09] :

$$I = \frac{E \cos \theta_{inc}}{\sqrt{\pi} \tau_{(1/e)} \pi \sigma_{(1/2)}^x \sigma_{(1/2)}^y} \eta \quad (4.7)$$

où E est l'énergie du laser, $\tau_{1/e} = \tau/2,35$ où τ est la largeur à mi-hauteur de la durée d'impulsion et $\sigma_{(1/2)}$ est la largeur à mi-hauteur de la tache focale. Enfin, θ_{inc} est l'angle d'incidence du faisceau laser et η est la proportion d'énergie contenue dans l'ellipse de demi grand axe et petit axe σ^x et σ^y par rapport à un profil gaussien qui en contient 63%. Les dimensions de la tache focale du laser sont des inconnues de l'équation (4.7). La figure 4.4 présente le dispositif expérimental utilisé pour la mesure de celles-ci.

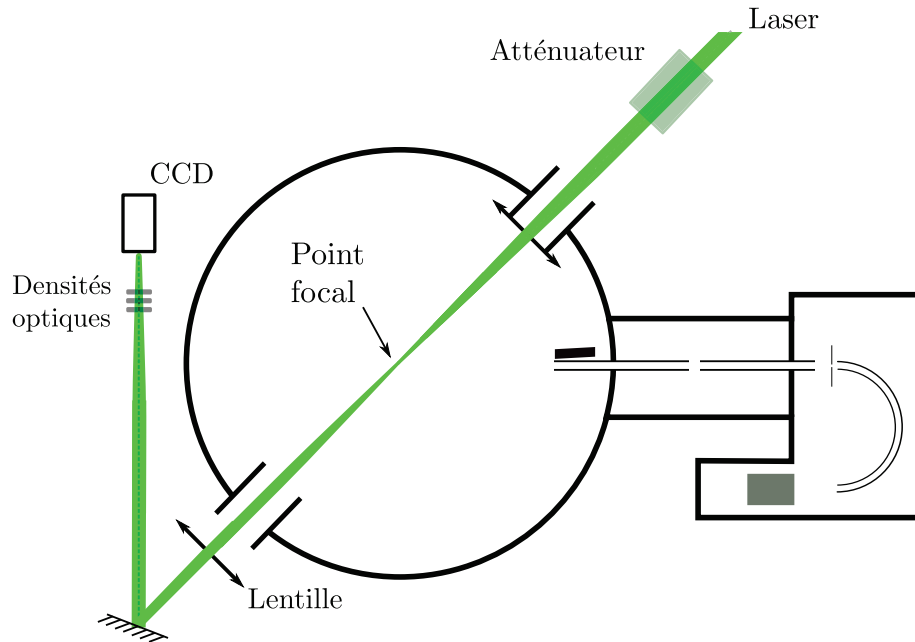


FIGURE 4.4 – Schéma représentant la mesure de la tache focale du laser.

La mesure de la tache focale est réalisée sans cible et à l'air. L'énergie du faisceau laser est atténuée ($E < 1$ mJ) à l'aide de l'association d'une lame de Brewster et d'une lame demi-onde, et est focalisée ensuite dans la chambre. Une lentille disposée sur

1. voir www.continuumlasers.com/

le même axe optique que la lentille de focalisation conjugue le point focal sur le chip d'une CCD avec un grandissement de 2,4. Malgré la diminution de l'énergie par l'atténuateur, la densité d'énergie surfacique est encore trop importante pour la caméra. Des densités optiques sont alors disposées sur le trajet du faisceau pour la protéger. La figure 4.5 présente une image prise avec la caméra CCD de la tache focale du laser.

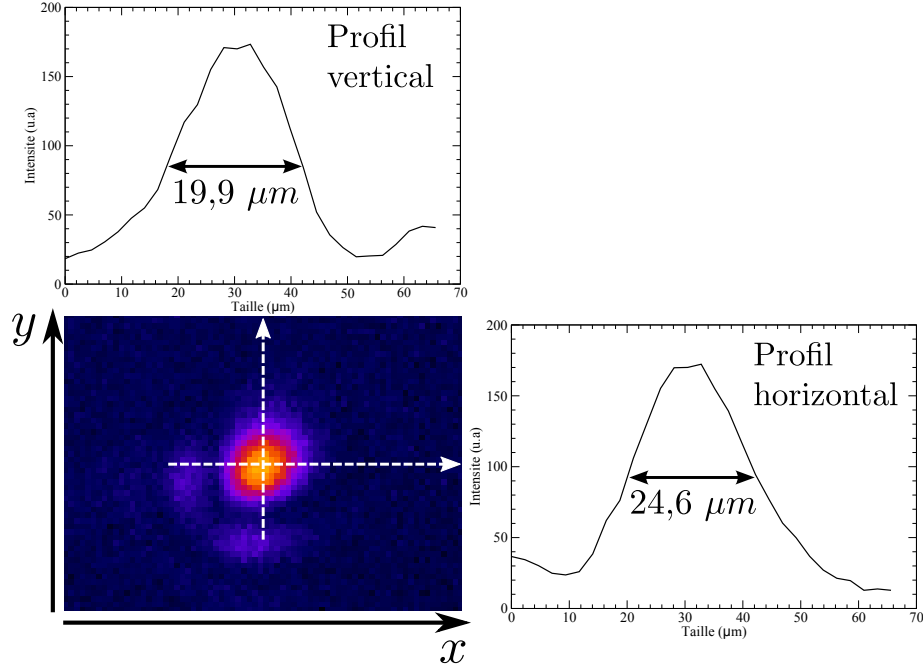


FIGURE 4.5 – Tache focale mesurée avec la caméra CCD avec les profils horizontaux et verticaux de la tache. Les valeurs à mi-hauteur des profils sont indiquées.

La CCD est montée sur une platine micro-métrique afin d'étalonner les échelles spatiales de l'image. Connaissant le grandissement de la lentille ($\gamma=2,39$), la tache focale peut ainsi être mesurée. La tache focale est légèrement ellipsoïdale, la mi-hauteur du petit axe et du grand axe sont respectivement de $19,9 \mu\text{m}$ et $24,6 \mu\text{m}$. Dans notre cas, les valeurs des différents paramètres sont listées dans le tableau 4.1.

E (J)	$\theta(^{\circ})$	$\tau_{(1/e)}$ (ns)	$\sigma_{(1/2)}^x$ (μm)	$\sigma_{(1/2)}^y$ (μm)	η
1	45	4,1	10,3	8,45	0,618

TABLEAU 4.1 – Valeurs des différents paramètres pour calculer l'intensité laser par la relation (4.7).

L'intensité maximale sur la cible est donc de :

$$I_{\text{max}} = 2,2 \times 10^{13} \text{ W/cm}^2 \quad (4.8)$$

L'enjeu est de placer la cible sur le point focal. Pour cela, un collecteur de charge placé à l'entrée du vide différentiel est utilisé. On considère que les ions détectés par le collecteur sont d'autant plus rapides que le point focal est localisé près de la surface de la cible.

4.2.2 Collecteur de charge

Le collecteur de charge nous permet de vérifier la bonne reproductibilité tir à tir de l'interaction laser-matière. La figure 4.6 représente une vue schématique du collecteur de charge et du conditionneur du signal associé. Les collecteurs de charge sont des détecteurs constitués de deux cylindres conducteurs imbriqués l'un dans l'autre et séparés par un isolant. Ils sont sensibles à la charge reçue au cours du temps. Le cylindre interne (appelé partie collectrice) est polarisé à une tension négative, notée V_{coll} , tandis que la base du collecteur de charge est reliée à la masse. Un champ électrique est alors créé entre l'entrée de la base et celle de la partie collectrice permettant de repousser les électrons du plasma qui entreraient dans le détecteur. Le diamètre d'entrée de la base du collecteur de charge est de 500 μm . Lorsque les particules atteignent le fond de la partie collectrice, l'apport des charges génère un courant d'intensité i dont la polarité dépend du signe de la charge de la particule. Un apport de charge positif (ion) conduit à un courant i de polarité positive (selon l'illustration de la figure 4.6). Un Té de polarisation permet de conditionner le signal électrique : il découple le générateur de tension appliquant la tension de polarisation du collecteur V_{coll} de l'appareil de mesure (oscilloscope).

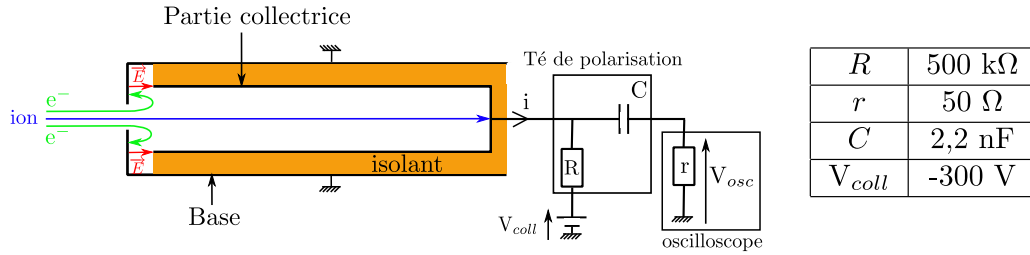


FIGURE 4.6 – Schéma de fonctionnement d'un collecteur de charge et du conditionneur associé.

Le signal en tension mesuré à l'oscilloscope est ainsi relié au courant i via l'équation différentielle suivante :

$$\frac{di}{dt} = \frac{V_{osc}}{RrC} + \left(\frac{r+R}{rR} \right) \frac{dV_{osc}}{dt} \quad (4.9)$$

qui fait intervenir les paramètres du circuit définis sur le synoptique de la figure 4.6. L'impulsion en courant du signal généré par la collection des particules est de faible durée (quelques μs) par rapport au temps caractéristique RC ($RC=1,1$ ms). Aussi le premier terme à droite de l'égalité est négligeable devant le second terme et

la tension V_{osc} mesurée à l'oscilloscope est égale au produit ri où r est l'impédance de charge de l'oscilloscope ($50\ \Omega$). La figure 4.7 présente l'exemple d'un signal collecteur obtenu pour un tir sur une cible de cuivre. Afin de positionner la tache focale sur la cible, nous allons minimiser le temps de vol, noté t_{max} , de l'amplitude maximum du signal du collecteur de charge.

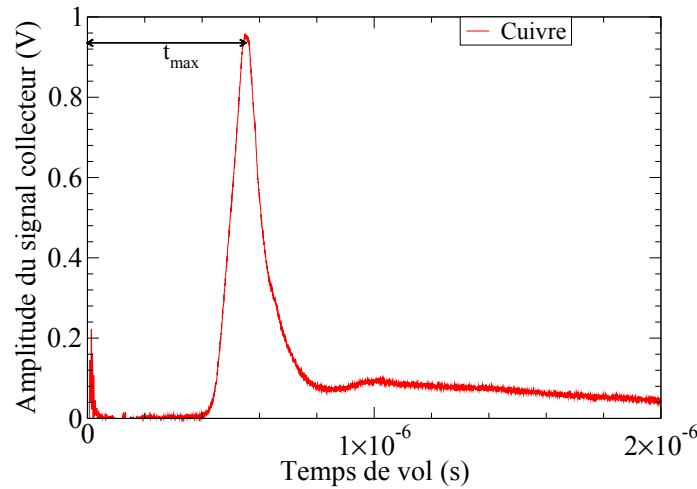


FIGURE 4.7 – Exemple d'un signal du collecteur de charge obtenu après un tir laser sur une cible de cuivre. Le terme t_{max} désigne le temps de vol où l'amplitude du signal collecteur est maximale.

4.2.3 Alignement de la cible

La figure 4.8 présente la procédure d'alignement du faisceau laser au centre du vide différentiel. Les numéros des différentes étapes sont représentés sur cette figure. Pour que les ions produits dans le plasma et émis perpendiculairement à la cible entrent dans le déviateur, l'interaction du laser sur la cible doit être centrée par rapport au vide différentiel. Pour réaliser l'alignement, une pointe est disposée sur le porte-cible. Les différentes étapes de l'alignement sont :

- étape 1 : on détermine les coordonnées x_p et y_p du porte-cible de manière à ce que la pointe soit centrée sur l'axe du vide différentiel,
- étape 2 : sans lentille et après atténuation à 20 mJ de l'énergie laser, on déplace le porte-cible de z_p pour amener la pointe au centre du faisceau,
- étape 3 : on place la lentille de focalisation et on règle le positionnement des miroirs de renvoi pour que le faisceau tape sur la pointe,
- étape 4 : pour que le laser interagisse sur la cible dans l'axe du vide différentiel, il faut tenir compte de l'épaisseur de la cible e_c . La valeur de z_c correspondante est alors (figure 4.9) :

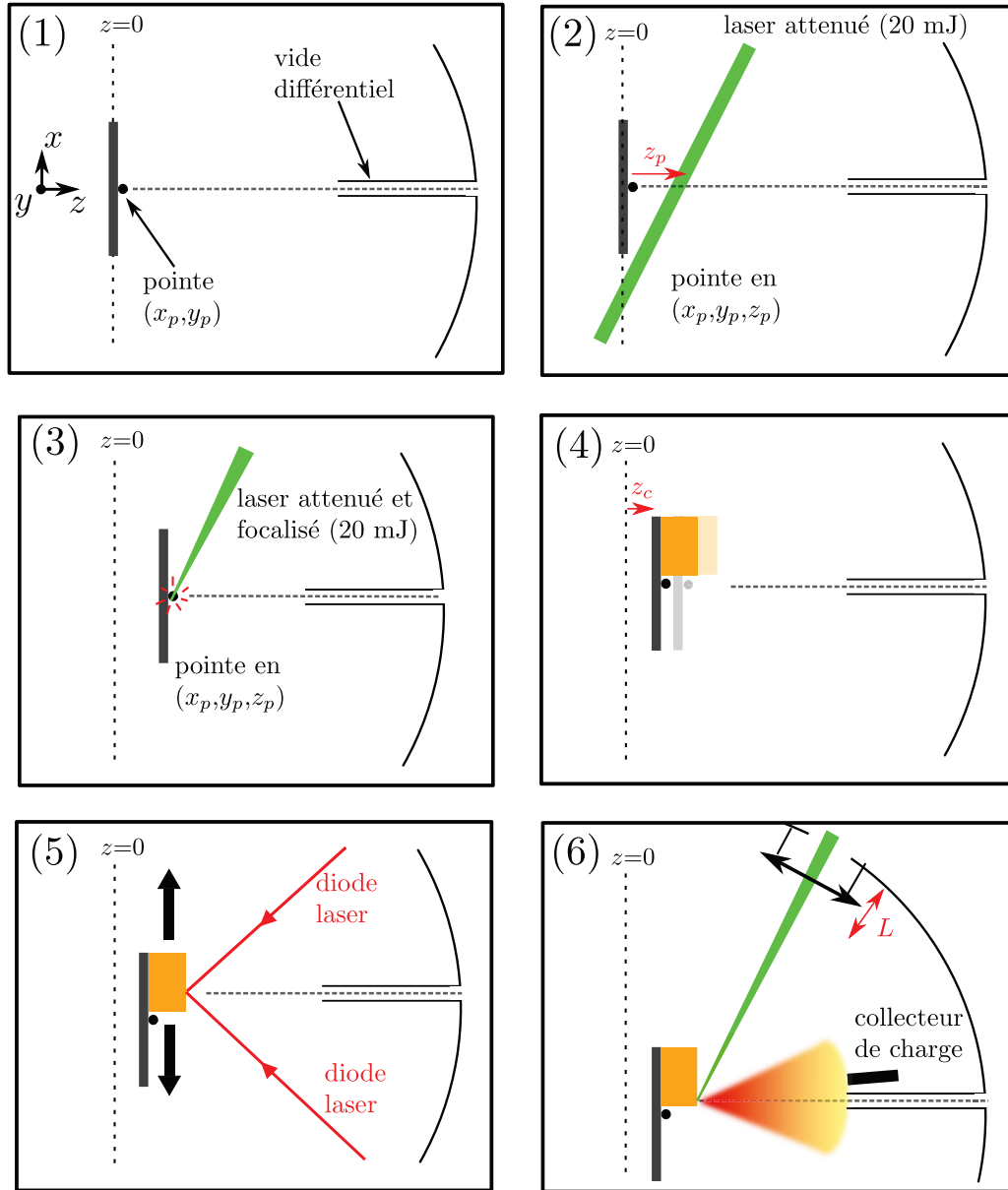


FIGURE 4.8 – Alignement de la pointe sur le vide différentiel.

$$z_c = z_p - \Delta p + e_c$$

où Δp est la distance du porte-cible au sommet de la pointe.

- étape 5 : à l'aide de deux diodes laser concourantes sur la cible, on vérifie que la cible est bien perpendiculaire au vide différentiel en s'assurant que les deux faisceaux restent concourants en déplaçant la cible sur les axes x et y . Une réorientation de la cible doit être réalisée si nécessaire en reprenant les étapes précédentes,

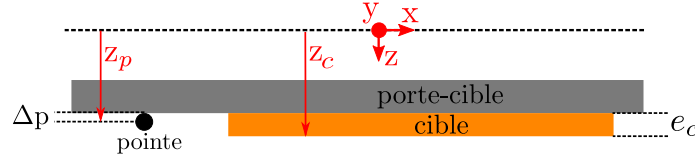


FIGURE 4.9 – Détermination de la distance z_c pour l'alignement de la cible.

- étape 6 : l'utilisation du collecteur de charge permet ensuite de déterminer si le laser est bien focalisé sur la cible. Pour cela, on déplace la lentille le long de son axe optique et on relève le temps de vol associé au maximum de signal du collecteur de charge. Le plus petit temps correspondant alors à la meilleure focalisation. En effet, plus l'intensité laser est grande, plus l'énergie des ions est importante et donc plus le temps de vol est petit. La figure 4.11 représente un exemple de la variation du temps de vol du maximum en fonction du déplacement de la lentille dans le cas d'une cible de cuivre. Le minimum en temps de vol n'est pas très prononcé : on a une gamme de l'ordre du mm pour laquelle l'intensité laser sur cible ne change pas. Ce comportement est relié à la longueur de Rayleigh du laser, notée Z_R (figure 4.10). Cette longueur définit la distance pour laquelle l'intensité laser a diminué d'un facteur 2 par rapport à son maximum au plan focal.

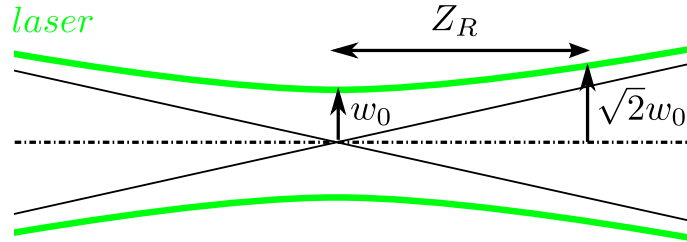


FIGURE 4.10 – Schéma représentant les quantités Z_R et w_0 .

Dans le cas d'un faisceau gaussien, l'intensité laser maximale s'exprime par :

$$I_{max} = \frac{2E_{laser}}{\pi\tau\omega_0^2} \quad (4.10)$$

où E_{laser} est l'énergie laser, τ est la durée d'impulsion prise à la mi-hauteur en intensité et ω_0 est le *beam waist*, c'est-à-dire la taille minimale du faisceau. La longueur de Rayleigh est reliée à ω_0 par la relation :

$$Z_R = \frac{\pi\omega_0^2}{\lambda} \quad (4.11)$$

où λ est la longueur d'onde du laser. Dans le cas du Nd :YAG, l'intensité laser est de $2,2 \times 10^{13}$ W/cm², l'énergie laser est de 1 J réparti sur une durée d'impulsion de 9 ns à mi-hauteur et ω_0^2 est de $3,5 \times 10^{-6}$ cm². La longueur de Rayleigh est ainsi, pour une longueur d'onde laser de 1,06 μ m, de 0,1 cm ce qui est du même ordre de grandeur que la largeur du minimum de la figure 4.11.

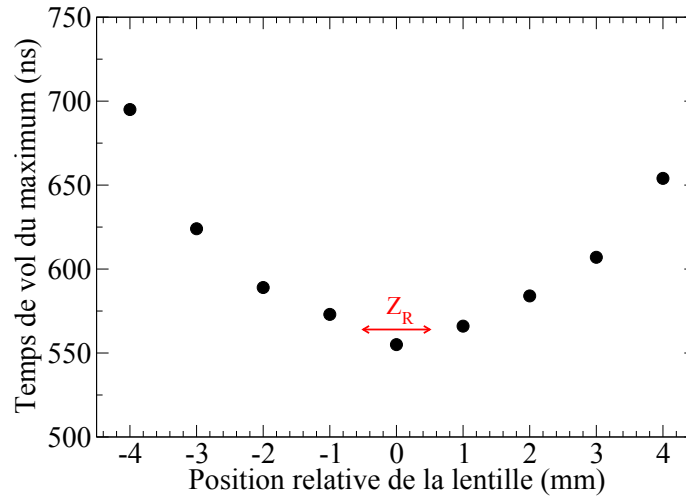


FIGURE 4.11 – Variation du temps de vol du maximum du signal du collecteur de charge en fonction du déplacement de la lentille. La longueur de Rayleigh Z_R du laser est représentée.

La figure 4.12 présente l'exemple des signaux du collecteur de charge réalisés lors de l'interaction du laser Nd:Yag sur une cible d'aluminium, de cuivre et de tantale. L'origine des abscisses correspond à l'instant du tir laser. Ces spectres sont obtenus après une moyenne sur 10 tirs. Le spectre du collecteur de charge présente deux composantes :

- une composante principale (temps de vol ≤ 1 μ s) qui est constituée des ions qui ont acquis leur énergie par absorption du laser dans la cible [Lá03].
- La deuxième population (temps de vol > 1 μ s), plus lente et de moindre amplitude, est produite par la réabsorption du rayonnement X à l'extérieur de la tache focale [Lá03]. Cette deuxième composante est plus visible sur la cible de cuivre et de tantale car le rayonnement X émis est d'autant plus important que le numéro atomique de la cible est grand.

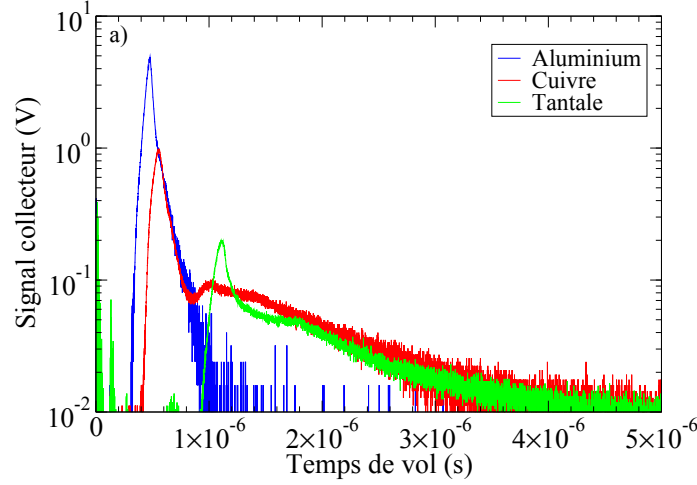


FIGURE 4.12 – Exemple d'un signal du collecteur de charge lors d'un tir laser sur une cible d'aluminium, de cuivre et de tantale.

4.2.4 Déviateur électrostatique

Les caractéristiques géométriques du déviateur utilisé dans cette étude sont représentées sur la figure 4.13.

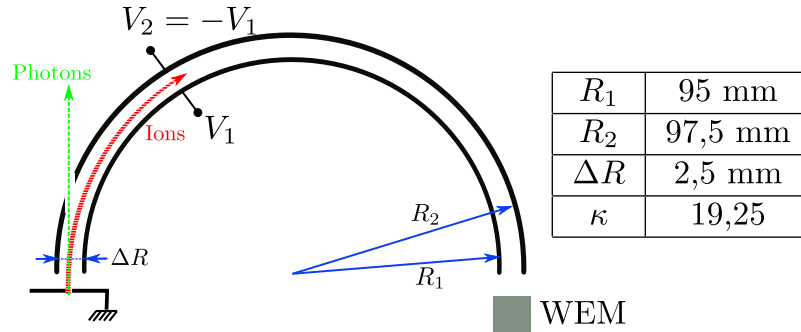


FIGURE 4.13 – Schéma représentant le déviateur électrostatique avec ses dimensions. La tension V_1 est négative.

À l'entrée du déviateur est disposée une plaque reliée à la masse avec un trou de 500 μm de diamètre centré sur l'entrée du déviateur pour limiter le nombre de particules entrant dans le déviateur. Un trou disposé sur la plaque arrière du déviateur et aligné avec le trou d'entrée (diamètre inférieur au mm) empêche les photons de très basses énergies de diffuser à l'intérieur du déviateur jusqu'au détecteur d'ions.

La figure 4.14 présente un spectre expérimental des ions détectés en sortie du déviateur électrostatique dans le cas d'un tir sur une cible d'aluminium (figure a) et de cuivre (figure b) avec le laser Nd:Yag. La figure c) est un agrandissement de la figure b) dans la région 2,5-4 μs . Le détecteur utilisé (une WEM) fera l'objet d'une description détaillée dans la partie suivante. Sur le spectre expérimental de l'aluminium de

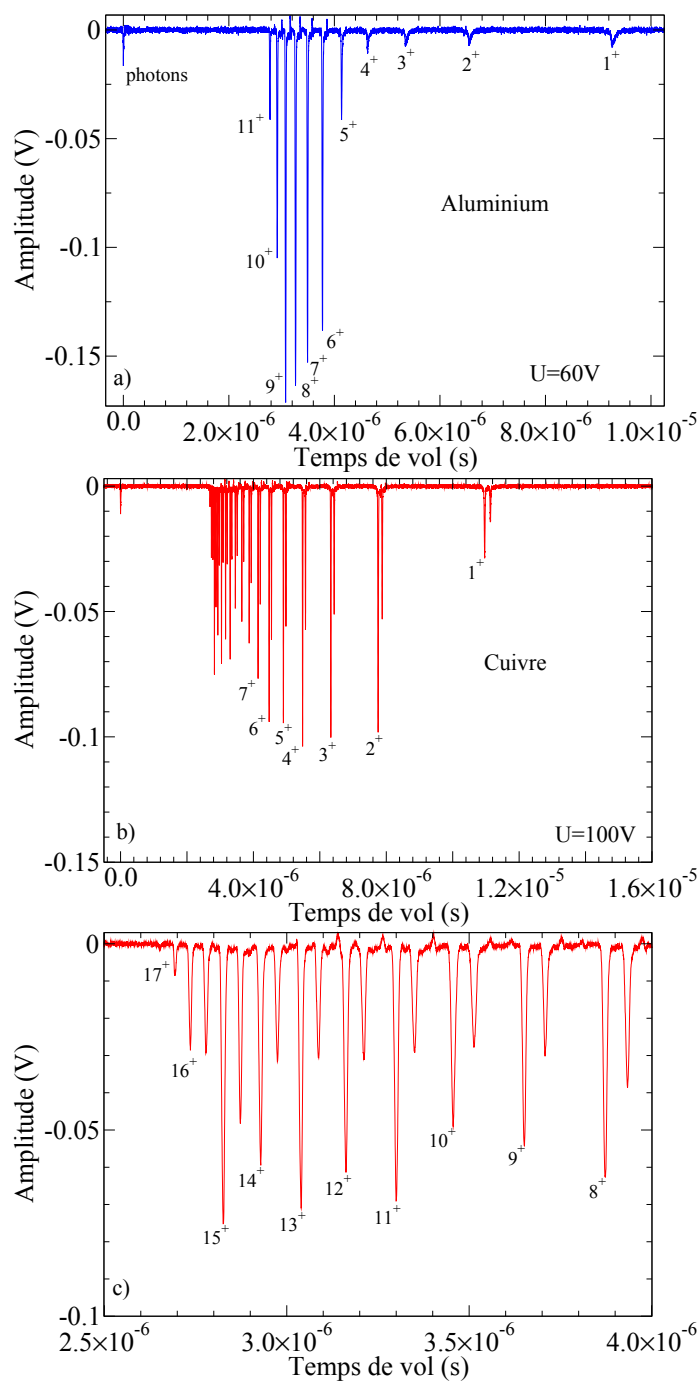


FIGURE 4.14 – Exemple de spectres en temps de vol obtenus avec le déviateur électrostatique à une tension U de 60V pour l'aluminium et 100V pour le cuivre avec les états de charge associés. La figure c) est un agrandissement dans la région 2,5-4 μ s du spectre de cuivre.

la figure 4.14, on distingue un premier pic, à $t=0$, correspondant aux photons qui ont été produits lors de l'interaction laser et qui diffusent jusqu'au détecteur. Ensuite, les pics correspondent aux différents états de charge de l'aluminium, du 11^+ à une énergie de 12,705 keV au 1^+ d'énergie 1,155 keV. Dans le cas de l'ion Al^{11+} les deux derniers électrons liés sont ceux de la couche K et l'intensité laser n'est pas suffisante pour les arracher car leur énergie de liaison est trop importante (≈ 2 keV). Le tableau 4.2 présente la comparaison des temps de vol expérimentaux et théoriques pour les états de charge du spectre d'aluminium de la figure 4.14. Les écarts entre les deux temps de vol sont généralement inférieurs à la largeur des pics (largeur étant égale à 10 ns pour un temps de l'ordre de 1 μ s et à 100 ns pour des temps supérieurs à 10 μ s). La cinématique des ions dans le déviateur est bien comprise, on peut ainsi identifier les ions sans ambiguïté.

Notons que sur le spectre des ions du plasma de cuivre, les pics de chaque état de charge sont dédoublés. Il s'agit des deux isotopes stables, le cuivre 63 et le cuivre 65 dont les abondances respectives sont de 69,17% et 30,83%. Pour un état de charge donné, l'énergie cinétique est fixée. Ainsi la vitesse du ^{63}Cu est plus grande que celle du ^{65}Cu . Le premier pic en temps de vol correspond donc au ^{63}Cu et le deuxième, plus petit d'un facteur 2 sur l'amplitude, au ^{65}Cu . Notons que les rapports d'abondance entre les deux isotopes sont par ailleurs qualitativement vérifiés, ce qui signe un régime de fonctionnement linéaire de la WEM.

État de charge	Temps de vol théorique (μ s)	Temps de vol expérimental (μ s)
1	9,247	9,258
2	6,538	6,550
3	5,339	5,346
4	4,623	4,629
5	4,135	4,136
6	3,775	3,774
7	3,495	3,491
8	3,269	3,264
9	3,082	3,076
10	2,924	2,917
11	2,788	2,778

TABEAU 4.2 – Comparaison des temps de vol théoriques et expérimentaux pour une tension de déviateur de 60V sur une cible d'aluminium.

4.3 Le détecteur WEM

Le détecteur situé à la sortie du déviateur électrostatique doit avoir les caractéristiques suivantes :

1. rapide : le temps de montée du signal doit être de l'ordre de la ns pour pouvoir différencier un maximum d'états de charge,
2. sensible : c'est-à-dire qu'un tir laser doit être suffisant pour obtenir le spectre en temps de vol des ions,
3. la fonction de réponse du détecteur doit être connue sur une grande gamme d'énergie cinétique et d'état de charge afin de déterminer le nombre d'ions détectés.

Le détecteur idéal vérifiant tous ces critères n'existe pas à ce jour. Nous avons utilisé un multiplicateur d'électrons (WEM) qui vérifie les deux premiers points. La fonction de réponse de ce détecteur doit ainsi être déterminée. Pour cela, nous nous sommes servis d'une Faraday cup qui vérifie les points 1 et 3.

Dans cette partie, nous commencerons par décrire le détecteur WEM. Nous rechercherons ensuite le domaine de polarisation assurant la non distorsion du spectre de temps de vol par des effets de saturation. On présentera ensuite la Faraday cup et sa procédure d'étalonnage pour extraire le nombre d'ions absolu à la sortie du déviateur pour certains états de charge et certaines énergies. On utilisera ces résultats pour déterminer la fonction de réponse de la WEM par comparaison.

4.3.1 Présentation du détecteur

Le détecteur utilisé pour réaliser les mesures de temps de vol à la sortie du déviateur est une WEM de chez SGE version 14880². Il est constitué de 24 dynodes et permet d'obtenir un gain de l'ordre de 10^6 pour une tension de polarisation de -2800 V. Le temps de réponse est rapide, de l'ordre de la nanoseconde pour un signal induit par une seule particule. La figure 4.15 présente un schéma de fonctionnement de la WEM.

Les ions incidents traversent la fenêtre d'entrée de dimension 25×10 mm et entrent en collision avec l'électrode de conversion. Des électrons sont émis durant cette collision et sont ensuite guidés vers des dynodes qui vont multiplier leur nombre pour former le signal de sortie. Le détecteur possède l'option "Jitter compensation" qui permet de corriger le champ électrique, entre la fenêtre d'entrée et la dynode de conversion, de façon à ce que les ions ressentent le même potentiel quel que soit l'endroit du détecteur où ils passent. Cette option permet d'améliorer la largeur à mi-hauteur temporelle du signal (de 5 ns à 3 ns pour un signal induit par plusieurs ions).

2. voir www.sge.com

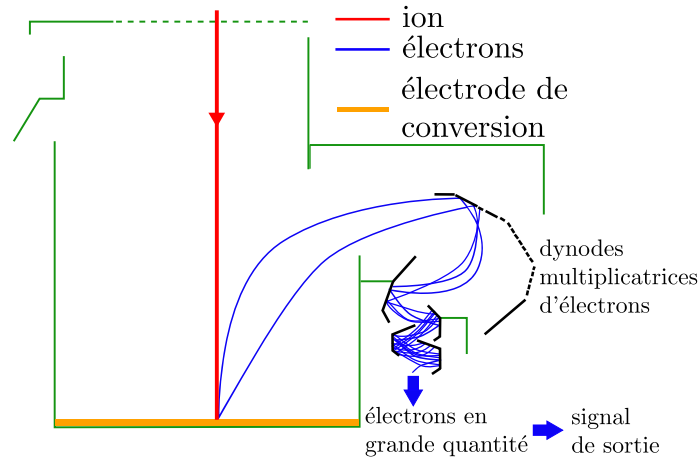


FIGURE 4.15 – Schéma représentant la WEM.

4.3.2 Recherche d'un domaine de polarisation

Avant de déterminer la fonction de réponse du détecteur, il faut s'assurer que le signal de sortie de la WEM n'est pas distordu., c'est-à-dire que la forme du spectre soit indépendante de la tension de polarisation. L'intégrale de chaque pic de ce signal dépend du nombre d'ions incidents et du gain d'amplification, qui lui-même dépend de la tension appliquée sur le détecteur et du nombre d'électrons secondaires émis lors de l'impact des ions sur l'électrode de conversion. Pour étudier la distorsion du spectre en temps de vol, on se place à une tension donnée du déviateur où plusieurs états de charge sont présents et on mesure l'intégrale des pics pour différentes valeurs de polarisation du détecteur. La tension de polarisation du détecteur sera notée U_{WEM} et sera toujours présentée en valeur absolue. La figure 4.16 présente la variation de l'intégrale du signal des différents états de charge considérés en fonction de la tension de polarisation de la WEM à une tension de déviation de 80 V.

L'intégrale du signal WEM évolue de manière proportionnelle à la tension de polarisation pour $|U_{WEM}| < 2500$ V et ce, pour les différents états de charge. Typiquement, il n'y a pas de distorsion du spectre de temps de vol lorsque les intégrales des pics ne dépassent pas quelques nVs : cette valeur seuil que ne doit dépasser aucune des intégrales des pics constitue notre critère de non distorsion. Lorsque $|U_{WEM}| \geq 2500$ V, on atteint un régime de saturation et la proportionnalité de l'intégrale du signal est perdue entre les différents états de charge. Par exemple dans le cas de la cible d'aluminium, le signal de l'état de charge qui atteint la WEM en premier (le 11^+), continue de croître avec la tension de polarisation. Au-delà de 2500 V, par contre, pour les états de charge ayant des temps de vol plus grands (états de charge inférieurs à 11^+) l'intégrale du signal diminue avec la tension de polarisation. Le gain du détecteur n'a pas eu le temps de récupérer sa valeur optimale pour les états de charge suivants.

La fonction de réponse du détecteur va être déterminée pour une tension de po-

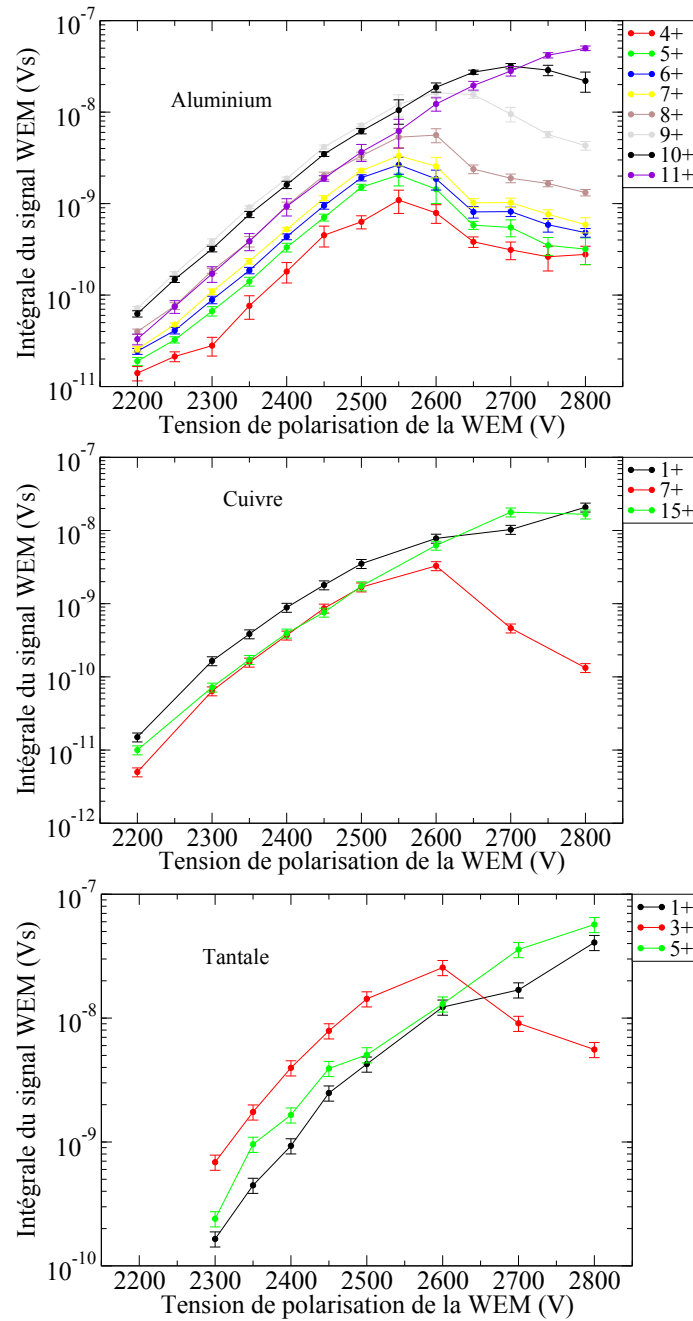


FIGURE 4.16 – Variation des intégrales des signaux des états de charge 4+ à 11+ de l'aluminium, 1+, 7+ et 15+ pour le cuivre 63 et 1+, 3+ et 5+ pour le tantale en fonction de la tension de polarisation de la WEM. La tension du déviateur est de 80V. Les données représentent la moyenne de l'intégrale et son écart-type déterminés sur 10 tirs lasers.

larisation donnée. On définit le facteur d'amplification, noté A_f , comme le facteur par lequel la fonction de réponse doit être multipliée lorsque l'on change la tension de polarisation. Ce facteur d'amplification est déterminé uniquement lorsque les intégrales évoluent de manière proportionnelle avec la tension de polarisation ($|U_{WEM}| \leq 2500$ V). La figure 4.17 présente la variation du facteur d'amplification normalisée à $|U_{WEM}|=2450$ V en fonction de la tension de polarisation de la WEM.

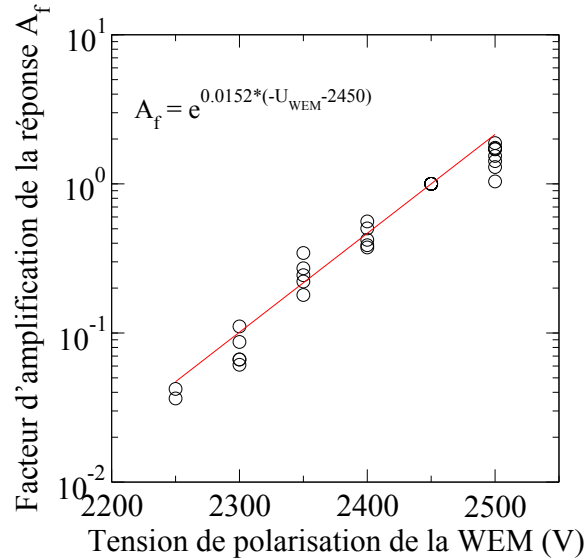


FIGURE 4.17 – Variation du facteur d'amplification en fonction de la tension de polarisation de la WEM.

Le facteur d'amplification évolue de manière exponentielle avec la tension de polarisation. Ainsi, une intégrale de signal mesurée à une tension de polarisation -2450 V sera 10 fois plus petite à une tension de -2300 V. Dans la suite de l'étude, la tension de polarisation de la WEM utilisée est de -2450 V et permet ainsi de s'assurer que le signal de la WEM n'est pas distordu.

La détermination de la fonction de réponse de la WEM nécessite de connaître le nombre d'ions qui sont à l'origine de chaque pic du spectre en temps de vol. La détermination de la quantité d'ions absolue est réalisée avec une Faraday Cup.

4.3.3 Mesure absolue du nombre d'ions

Une Faraday cup fonctionne selon le même principe que le collecteur de charge (paragraphe 4.2.2). Elle permet de mesurer le courant généré par l'arrivée des particules chargées sur le détecteur. La figure 4.18 représente un schéma de la Faraday cup et du conditionneur du signal utilisé.

La partie collectrice de la Faraday cup est constituée d'un parallélépipède de cuivre évidé ($6 \times 4 \times 4$ cm³) dont l'entrée est protégée par une plaque polarisée à une tension négative ($V_p = -400$ V). Celle-ci permet d'éviter la collection d'éventuels élec-

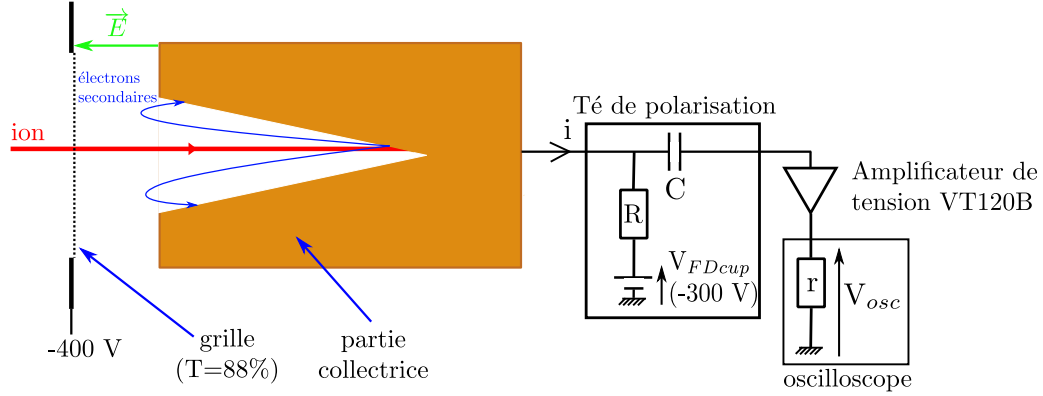


FIGURE 4.18 – Représentation de la Faraday cup utilisée pour mesurer le nombre d'ions en sortie du déviateur électrostatique.

trons lents formés dans le déviateur. Une grille de transmission T de 88% est disposée sur la plaque afin de bien définir les lignes de champ à l'entrée de la Faraday cup. La partie collectrice est polarisée à une tension $V_{FDcup} > V_p$, pour que les électrons secondaires émis durant l'impact des ions sur la partie collectrice ne puissent pas s'échapper. Les valeurs des résistances et de la capacité sont identiques à celles utilisées pour le collecteur de charge. Ainsi, le signal en tension mesuré sur l'oscilloscope est proportionnel au courant i généré par la collection des ions.

Cependant, dans le cas de la Faraday cup, le nombre d'ions à la sortie du déviateur n'est pas suffisant pour que le signal soit mesurable pour tous les états de charge et toutes les énergies cinétiques. En effet, la dynamique de codage en tension de l'oscilloscope limite l'amplitude minimale du signal mesurable à environ 500 μV . Ainsi pour une durée d'impulsion de 10 ns, le plus petit courant I_{lim} théoriquement mesurable (en l'absence de bruit électronique) est donc :

$$I_{\text{lim}} = 500 \times 10^{-6} / 50 = 10^{-5} \text{ A} \quad (4.12)$$

ce qui équivaut à une charge totale Q_{lim} détectable sans amplification de :

$$Q_{\text{lim}} = I_{\text{lim}} t = 10^{-5} \times 10^{-8} = 10^{-12} \text{ C} \quad (4.13)$$

Cette charge totale équivaut à $6,2 \times 10^6$ ions 1^+ ou $6,2 \times 10^5$ ions 10^+ . Le nombre d'ions en sortie du déviateur est généralement inférieur à cette limite. Pour amplifier le signal, nous avons utilisé le pré-amplificateur de tension VT120B de chez Ortec³. Ce pré-amplificateur permet de convertir une impulsion en courant en une impulsion en tension à travers une résistance de 50 Ω qui est ensuite amplifiée d'un facteur noté A . Ainsi, la tension de sortie V_{out} du pré-amplificateur s'écrit sous la forme :

$$V_{\text{out}} = 50 \times I_{\text{in}} \times A \quad (4.14)$$

3. voir www.ortec.fr

où I_{in} est l'impulsion en courant générée par les ions. Le temps de montée du signal en tension est inférieur à 1 ns, ce temps de montée est suffisamment rapide pour avoir une bonne séparation des différents états de charge. Le gain A d'amplification annoncé par le constructeur est de 200 dans les conditions nominales d'utilisation (charge collectée supérieure à 10^{-12} C).

Afin d'étalonner la chaîne de mesure de la Faraday cup, une impulsion en courant de charge totale contrôlée est envoyée dans le dispositif. La figure 4.19 présente la chaîne électronique utilisée pour ce travail. Un générateur d'impulsion en tension

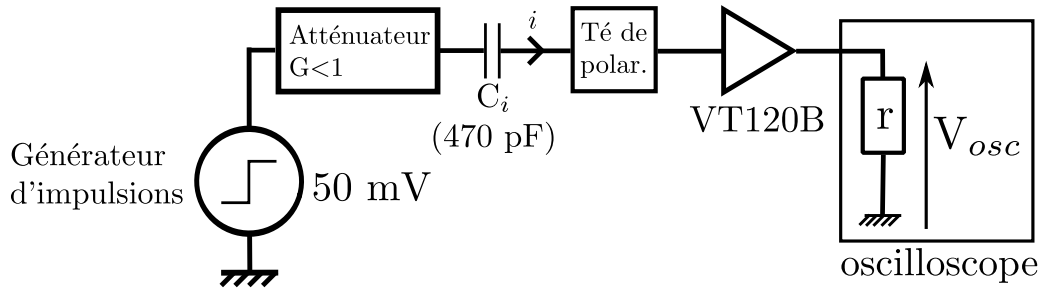


FIGURE 4.19 – Chaîne électronique permettant l'étalonnage de la chaîne de mesure de la Faraday cup.

délivre un échelon d'amplitude $\Delta U_i = 50$ mV. Cette tension échelon est ensuite diminuée en amplitude par des atténuateurs (bande passante \sim GHz) d'un facteur G . Pour convertir cet échelon en tension en une impulsion en courant, un condensateur de capacité $C_i = 470$ pF est utilisé. On obtient ainsi une impulsion en courant i dont la largeur est donnée par le produit $rC_i \approx 20$ ns où r est l'impédance ($r = 50 \Omega$) de la ligne de mesure (câble-oscilloscope). La charge totale Q_i de cette impulsion vaut alors $Q_i = GC_i \Delta U_i$. Le pré-amplificateur convertit cette impulsion en une impulsion en tension amplifiée que l'on mesure ensuite à l'oscilloscope.

La figure 4.20 représente le signal typique de structure bipolaire obtenu à l'oscilloscope. La partie négative est le résultat de la conversion de l'impulsion en courant en tension et de son amplification. La partie positive est intrinsèque au pré-amplificateur et est due à un mauvais retour à la ligne de base. Notons que ce pré-amplificateur rapide est utilisé généralement pour des mesures de temps et non pour faire de la spectroscopie d'énergie. Dans la suite, nous nous intéresserons au signal négatif et plus particulièrement à son intégrale (par rapport à la ligne de base). Ainsi, en faisant varier l'amplitude $G\Delta U_i$ à l'aide de différents atténuateurs, on peut construire un abaque permettant de relier l'intégrale du signal mesurée à l'oscilloscope et la charge injectée Q_i dans la chaîne de mesure (figure 4.21). La variation de l'intégrale du signal en sortie du pré-amplificateur en fonction de la charge injectée est linéaire avec une pente, notée a , de 3000 Vs.C $^{-1}$. Par exemple, pour une charge injectée de 10^{-14} C, on obtient en sortie une intégrale de 3×10^{-11} Vs à l'oscilloscope.

La chaîne de mesure de la Faraday cup étant étalonée, nous pouvons mesurer le nombre d'ions à la sortie du déviateur dans quelques configurations d'états de charge

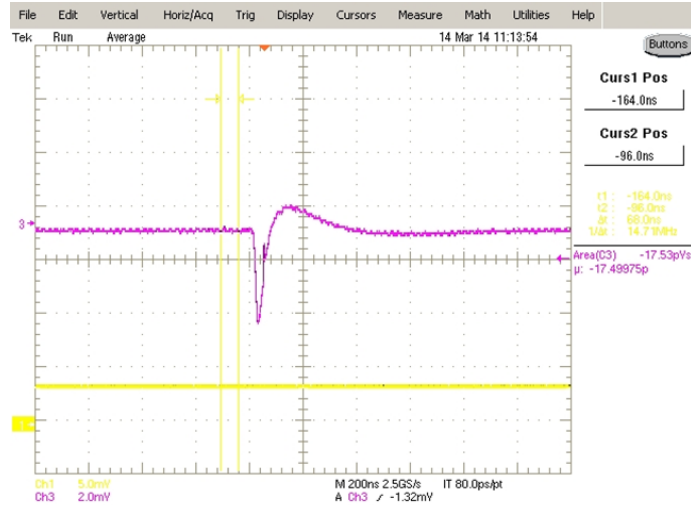


FIGURE 4.20 – Signal du générateur d'impulsion obtenu sur l'oscilloscope permettant l'étalonnage de la chaîne de mesure.

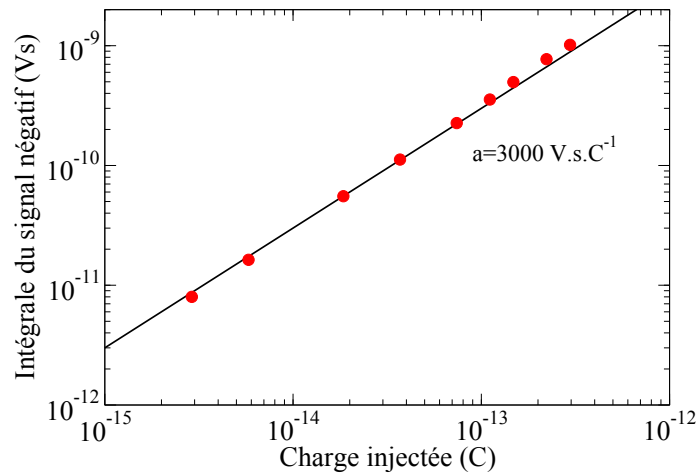


FIGURE 4.21 – Variation de la charge mesurée à l'oscilloscope en fonction de la charge injectée dans la chaîne de mesure. La pente de la régression linéaire est de $a = 3000 \text{ V.s.C}^{-1}$.

et d'énergie. Ces mesures sont faites en réalisant une moyenne sur une centaine de tirs afin d'améliorer le rapport signal sur bruit. En effet, à une tension de déviation donnée, les ions arrivent toujours au même instant, l'intégrale du signal reste constante en moyenne. Par contre, la ligne de base est constituée d'un bruit blanc et son niveau baisse en moyenne. Par exemple, la figure 4.22 représente le spectre en temps de vol obtenu avec la Faraday cup après une moyenne sur 100 tirs laser pour une tension de déviation de 180 V sur une cible de tantale.

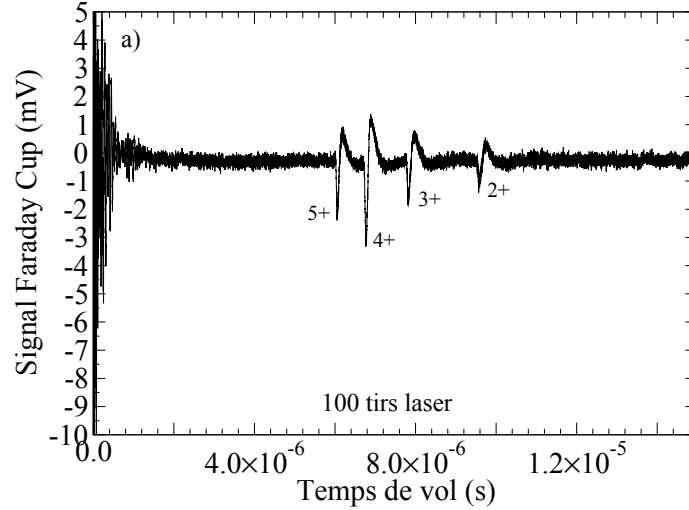


FIGURE 4.22 – Exemple d'un signal obtenu après une moyenne de 100 tirs laser avec la Faraday cup pour une tension de 180 V sur une cible de tantale.

Sur ce spectre, on distingue les états de charge 2^+ à 5^+ . Le nombre d'ions à l'état de charge Q , noté N_{ions}^Q , est déterminé par :

$$N_{ions}^Q = \frac{I_s^Q}{a \times T \times Q \times e} \quad (4.15)$$

où I_s^Q [Vs] est l'intégrale du pic de polarité négative de l'état de charge Q , a est le gain du pré-amplificateur ($a=3000 \text{ Vs.C}^{-1}$), T est la transmission de la grille de la Faraday cup ($T=88\%$) et enfin Qe [C] est la charge apportée par un ion d'état de charge Q . Le tableau 4.3 représente le nombre d'ions pour chaque état de charge de la figure 4.22.

Dans cet exemple, le nombre d'ions à l'origine de chaque pic varie entre 5×10^4 et 1×10^5 . L'incertitude sur ce nombre est obtenue en faisant varier les bornes d'intégration des pics de sorte à minimiser et à maximiser le nombre d'ions. Cette procédure est utilisée pour différentes tensions de déviateur de sorte à explorer une grande gamme en énergie des ions. Dans le cas de la cible de tantale, 9 tensions du déviateur ont été explorées. Pour chaque tension, une moyenne sur 100 tirs laser est réalisée. La même procédure est utilisée pour des cibles d'aluminium et de cuivre dont les spectres ont été obtenus après une moyenne sur 200 et 400 tirs respectivement. La

État de charge	N_{ions}^Q
2	$62\,400 \pm 4\,900$
3	$65\,300 \pm 4\,200$
4	$96\,500 \pm 6\,600$
5	$48\,800 \pm 3\,900$

TABLEAU 4.3 – Nombre d'ions détectés dans chaque pic de la figure 4.22.

figure 4.23 récapitule le nombre d'ions, mesuré avec la Faraday cup, associé à chaque état de charge en fonction de l'énergie cinétique des ions pour des tirs sur des cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale. La quantité d'ions en sortie du déviateur est comprise entre 10^3 et 10^5 pour la cible d'aluminium, entre 10^4 et 10^5 pour la cible de tantale et entre quelques 10^2 à 10^5 pour la cible de cuivre.

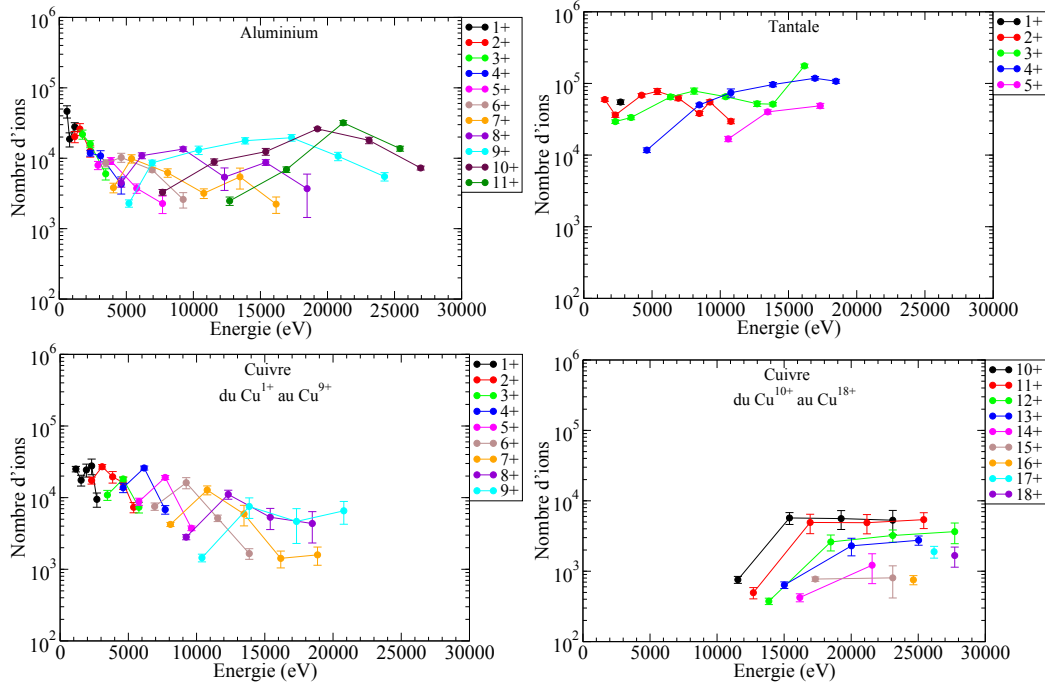


FIGURE 4.23 – Nombre d'ions mesuré avec la Faraday cup en fonction de l'énergie cinétique des ions.

4.3.4 Détermination de la fonction de réponse

La fonction de réponse de la WEM est définie comme la valeur de l'intégrale du signal par ion incident sur le détecteur. Elle dépend du nombre de masse, de l'état de charge et de l'énergie de l'ion [Mro99, Kra98]. La fonction de réponse pour un ion d'état de charge Q , d'énergie E , notée $R(Q, E)$, est déterminée expérimentalement

par :

$$R(Q, E) = \frac{I_{WEM}^{Q,E}}{N^{Q,E}} \quad (4.16)$$

où $I_{WEM}^{Q,E}$ [Vs] est l'intégrale du signal induit sur le détecteur lorsque $N^{Q,E}$ ions sont incidents sur la WEM avec l'état de charge Q et l'énergie E . L'unité de la fonction de réponse ainsi définie est en Vs.ion⁻¹. Elle va être déterminée dans cette partie à une tension de polarisation de -2450 V. Nous avons vu dans la partie 4.3.2 comment généraliser la fonction de réponse aux autres tensions de polarisation. Le nombre d'ions à la sortie du déviateur est connu pour certaines tensions de déviation grâce aux mesures réalisées avec la Faraday cup. Ainsi, pour obtenir la fonction de réponse de la WEM, il faut se placer aux mêmes tensions de déviation utilisées avec la Faraday cup et relever les intégrales des signaux induits par les différents états de charge sur la WEM. Le tableau 4.4 résume les mesures qui ont ainsi été effectuées.

Cible	Nombre de réponses mesurées	Q_{min} - Q_{max}	E_{min} - E_{max} (keV)
Al	45	1+ - 11+	0,58 - 25,3
Cu	43	1+ - 15+	1,15 - 27,6
Ta	28	1+ - 5+	1,5 - 18,4

TABLEAU 4.4 – Récapitulatif des mesures réalisées pour la détermination de la réponse de la WEM.

La figure 4.24 présente la comparaison des signaux issus de la Faraday cup et de la WEM pour une cible de tantale à une tension de déviation de 180 V. On voit clairement sur cet exemple la meilleure sensibilité de la WEM avec la présence de pics associés aux états de charge 1⁺ et 6⁺ qui ne sortent pas de la ligne de base pour la Faraday Cup. Par exemple dans le cas de l'état de charge 4⁺ (E=13,86 keV) du

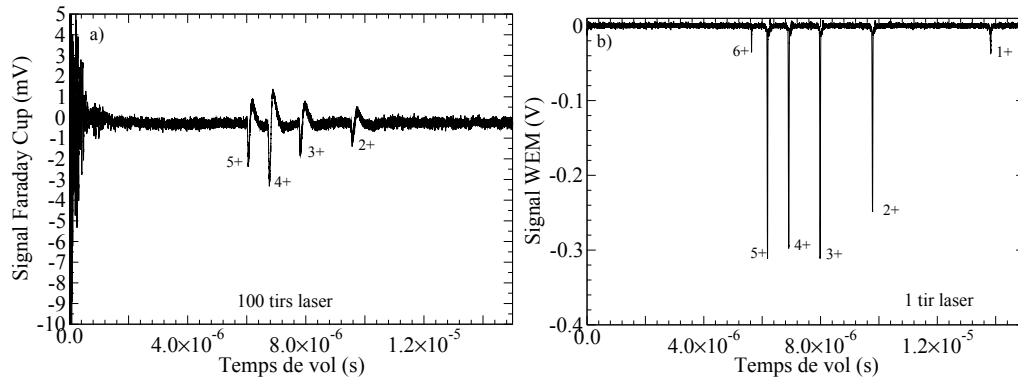


FIGURE 4.24 – Signal généré par des ions tantale sur la Faraday cup (figure a) et sur la WEM (figure b) à une tension de 180 V de déviation.

tantale de la figure 4.24, nous avons :

$$\left. \begin{aligned} I_{WEM}^{4+} &= 8,01 \pm 0,02 \text{ nVs} \\ N^{4+} &= 96\,500 \pm 6600 \text{ ions} \end{aligned} \right\} R_{Ta}(4^+, 13,86 \text{ keV}) = (83,1 \pm 5,8) \times 10^{-15} \text{ V.s/ion} \quad (4.17)$$

La même procédure est appliquée pour toutes les tensions de déviation et pour tous les signaux des différents états de charge des trois éléments pour lesquels le signal de la Faraday cup est exploitable. La figure 4.25 présente la fonction de réponse de la WEM pour les trois éléments et pour différents états de charge. A un état de charge donné, la dynamique de la fonction de réponse est petite. On observe des valeurs basses lorsque l'état de charge et l'énergie cinétique sont faibles et des réponses qui présentent un plateau au-delà de 5 keV quel que soit l'état de charge et la nature de l'élément. Les barres d'erreur ne permettent pas de conclure sur une dépendance avec l'état de charge au dessus de 5 keV.

Cette fonction de réponse doit pouvoir être corrélée au taux de production d'électrons secondaires dans l'électrode de conversion. On ne connaît cependant pas la nature de cette électrode (cf. figure 4.15). A titre indicatif, nous allons faire une comparaison avec les taux de conversion des électrons secondaires sur du CuBe publiés par G. Cano [Can73]. Notons que le CuBe est l'alliage qui est généralement utilisé pour réaliser les dynodes des photomultiplicateurs. La figure 4.26 présente le nombre d'électrons secondaires émis par ion incident en fonction de l'énergie cinétique des ions aluminium et cuivre sur du CuBe mesuré par G. Cano [Can73].

Lorsque l'énergie cinétique des ions est faible (typiquement de 0 à 5 keV) le nombre d'électrons secondaires, que l'on notera γ , est faible et augmente avec l'énergie de l'ion. Pour des énergies supérieures à 5 keV, les valeurs de γ paraissent être constantes. Un facteur entre 10 et 30 est observé entre le minimum et le maximum du taux de conversion dans toute la gamme en énergie cinétique. Ce facteur est similaire à celui mesuré sur nos fonctions de réponse. L'auteur constate qu'au-delà de 5 keV, la variation du nombre d'électrons secondaires est proportionnelle à $m^{-2/5}$ où m est la masse de l'élément. En appliquant cette relation sur le cuivre et le tantale et en normalisant à la valeur de l'aluminium, on obtient :

$$\begin{aligned} \gamma_{Cu} &\propto 0,7\gamma_{Al} \\ \gamma_{Ta} &\propto 0,46\gamma_{Al} \end{aligned} \quad (4.18)$$

A partir des données des fonctions de réponse de la figure 4.25 que nous avons mesurées, on détermine la moyenne de la fonction de réponse pour des énergies supérieures à 5 keV. On obtient ainsi :

$$\begin{aligned} \overline{R}_{Al}(E \geq 5 \text{ keV}) &= 247 \text{ Vs.ion}^{-1} \\ \overline{R}_{Cu}(E \geq 5 \text{ keV}) &= 153 \text{ Vs.ion}^{-1} \\ \overline{R}_{Ta}(E \geq 5 \text{ keV}) &= 94 \text{ Vs.ion}^{-1} \end{aligned} \quad (4.19)$$

En normalisant à la fonction de réponse moyenne de l'aluminium, on obtient ainsi :

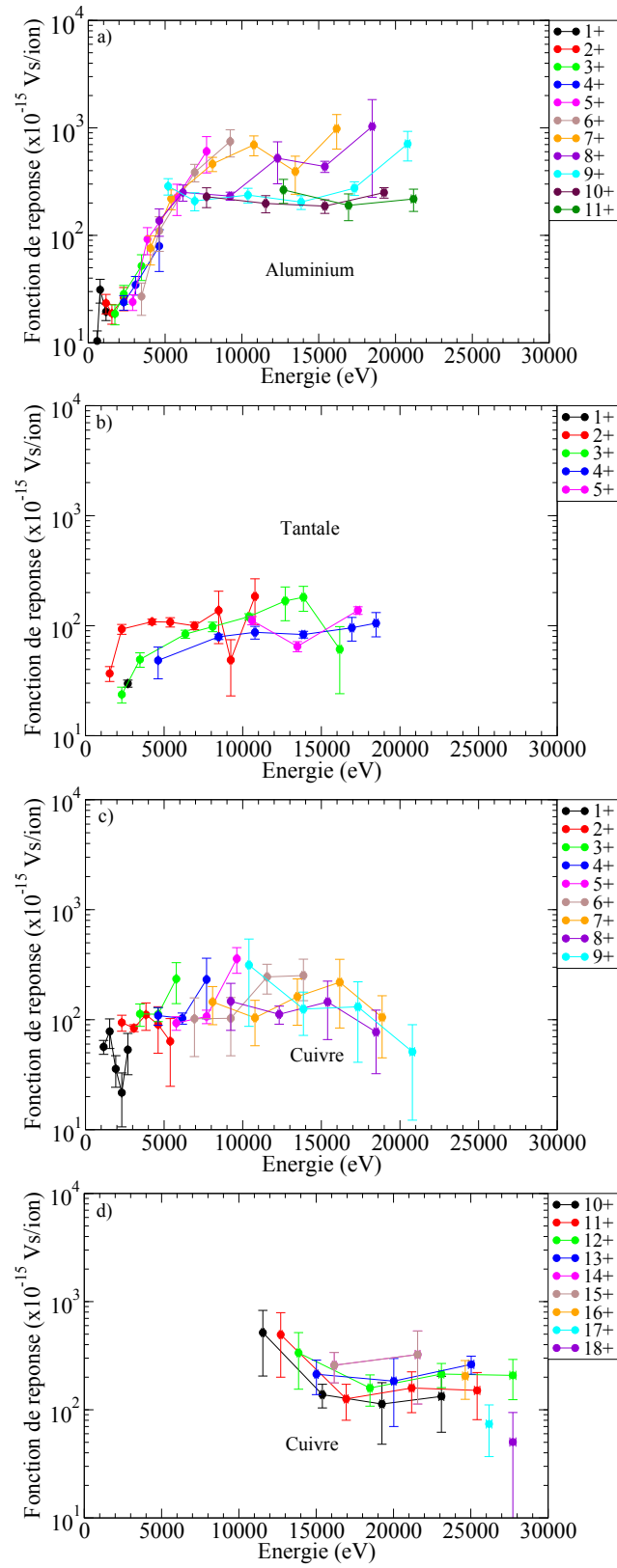


FIGURE 4.25 – Fonction de réponse de la WEM pour des ions aluminium, cuivre et tantale.

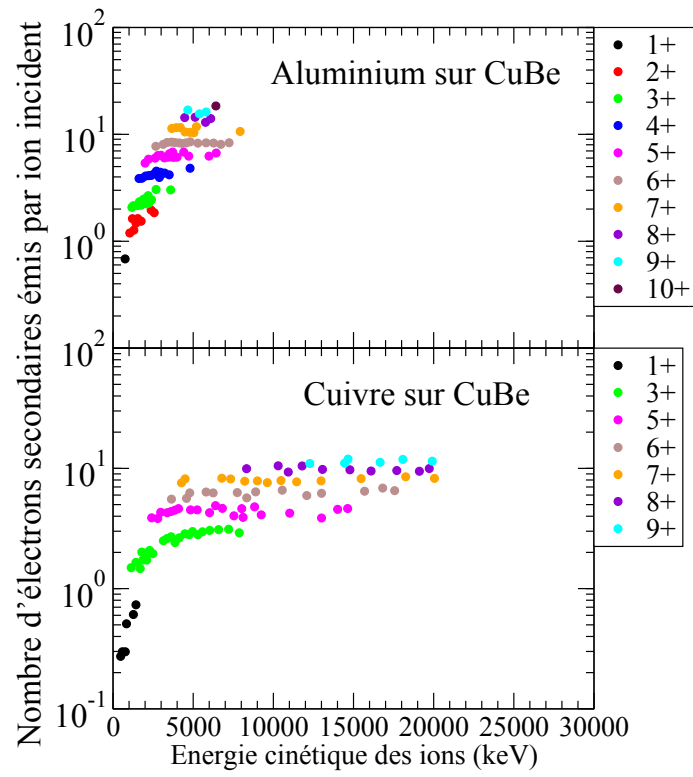


FIGURE 4.26 – Taux de production d'électrons secondaires lors de l'impact des ions aluminium et cuivre pour différents états de charge sur du CuBe mesurés par G. Cano [Can73].

$$\begin{aligned}\overline{R}_{Cu}(E \geq 5keV) &= 0,6\overline{R}_{Al}(E \geq 5keV) \\ \overline{R}_{Ta}(E \geq 5keV) &= 0,37\overline{R}_{Al}(E \geq 5keV)\end{aligned}\quad (4.20)$$

Ces valeurs sont proches de la dépendance en $m^{-2/5}$ du nombre d'électrons secondaires émis lors de l'impact d'un ion de masse m observée par G. Cano (cf. équation 4.18).

A un élément donné, les fonctions de réponse mesurées présentent de grandes fluctuations. L'intégration des signaux pour le cuivre et l'aluminium est difficile à extraire pour certains états de charge. Afin de réduire ces fluctuations et avoir une tendance globale, nous avons fait le choix de réaliser une moyenne glissante pondérée sur tous les états de charge. Réalisée sur quatre énergies consécutives, la moyenne pondérée de la fonction de réponse, notée R_p , s'écrit [Kno00] :

$$R_p(\overline{E}) = \frac{\sum_{i=1}^4 R(E_i)\sigma_i^{-1}}{\sum_{i=1}^4 \sigma_i^{-1}} \text{ avec } \overline{E} = \frac{1}{4} \sum_{i=1}^4 E_i \quad (4.21)$$

où σ_i représente l'erreur sur $R(E_i)$. L'erreur sur R_p , notée σ_p s'écrit alors :

$$\sigma_p = \frac{1}{\sqrt{\sum_{i=1}^4 \sigma_i^{-1}}} \quad (4.22)$$

La figure 4.27 présente les fonctions de réponse moyennes pondérées obtenues pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale à une tension de polarisation de -2450 V. Cette fonction de réponse peut être étendue aux autres tensions de polarisation à partir du facteur d'amplification déterminé précédemment (cf. figure 4.17).

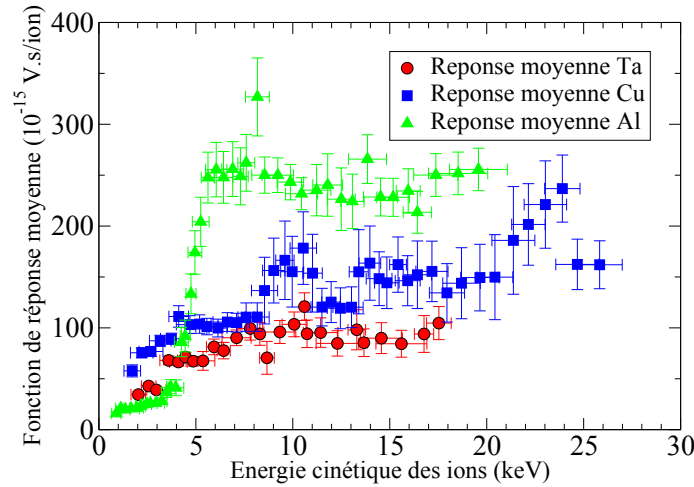


FIGURE 4.27 – Fonctions de réponse moyennes de la WEM pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale pour une tension de polarisation de -2450 V.

Ces données vont être utilisées pour l'ensemble des intégrales des pics mesurées lors des différentes mesures réalisées avec le déviateur électrostatique afin de construire les distributions en énergie des ions après expansion du plasma. Au préalable, il va falloir estimer la transmission de notre déviateur qui peut être très sensible aux effets de charge d'espace.

4.4 Transmission du déviateur

Nous allons vérifier la sensibilité de notre dispositif aux effets de charge d'espace en comparant le signal obtenu en sortie du déviateur avec un signal mesuré en amont de celui-ci. Pour cela, on dispose d'une distribution temporelle intégrée sur tous les états de charge mesurée avec le collecteur de charge situé dans la chambre d'interaction [Fle65]. Le protocole pour la détermination d'une transmission du déviateur est le suivant :

- En considérant un déviateur idéal (transmission de 100%), on peut construire à partir des distributions mesurées en sortie du déviateur une distribution en énergie "équivalente" $\left(\frac{d^2 N_{eq}^Q}{dE d\Omega}\right)$ à l'entrée du déviateur pour les différents états de charge Q .
- A partir de ces distributions, en intégrant sur la charge, on détermine le signal équivalent (appelé collecteur reconstruit dans la suite) au signal collecteur situé dans la chambre expérimentale. Nous verrons que le signal reconstruit est d'un niveau plus bas que celui du collecteur expérimental : le déviateur n'est pas idéal et sa transmission doit être estimée.
- Une comparaison quantitative entre le signal du collecteur de charge expérimental et celui du collecteur reconstruit est effectuée pour extraire une transmission du déviateur à une énergie cinétique des ions donnée.

Cette procédure est appliquée pour trois cibles d'éléments différents : le tantale, le cuivre et l'aluminium. Nous montrerons à l'issue de cette étude que la transmission de notre déviateur est fortement limitée par les effets de charge d'espace et qu'elle dépend de l'énergie des ions et de leur intensité surfacique.

4.4.1 Détermination des distributions ioniques équivalentes

Les mesures des distributions d'ions ont été réalisées pour différentes tensions du déviateur afin d'explorer une large gamme en énergie de la distribution. Le tableau 4.5 récapitule les tensions du déviateur qui ont été utilisées. A titre indicatif, l'énergie des ions d'états de charge 1^+ est indiquée pour les tensions minimales et maximales.

Pour chaque tension du déviateur, 10 tirs laser sont réalisés afin d'obtenir une moyenne et un écart-type des intégrales pour chaque état de charge. La distribution du nombre d'ions en fonction de l'énergie est calculée par la relation suivante :

Cible	Nombre de tensions U	U_{\min} - U_{\max} (V)	E_{\min}^{1+} - E_{\max}^{1+} (keV)
Al	15	20-170	0,38-3,2
Cu	19	20-200	0,38-3,8
Ta	26	40-200	0,77-3,8

TABLEAU 4.5 – Récapitulatif des tensions du déviateur pour la détermination des distributions ioniques mesurées avec la WEM. L'énergie des ions d'états de charge 1^+ est indiquée pour les tensions minimales et maximales à titre indicatif.

$$\frac{d^2 N^Q}{dE d\Omega} = \frac{I_{WEM}^Q}{R(Q, E) \times T \times \Delta E \times \Omega_{\text{dév}}} \quad (4.23)$$

où I_{WEM}^Q [V.s] est l'intégrale des signaux de la WEM de chaque état de charge, la fonction de réponse à l'énergie E et l'état de charge Q est notée $R(Q, E)$, $\Omega_{\text{dév}}$ est l'angle solide de l'entrée du déviateur. La dispersion en énergie d'un pic est notée ΔE et enfin le terme T désigne la transmission du déviateur. Pour construire ces distributions, il nous faut déterminer la résolution ($\Delta E/E$) de notre déviateur qui est une inconnue du problème.

4.4.1.1 Calcul de la résolution en énergie du déviateur

Pour déterminer cette grandeur, nous allons utiliser le logiciel SIMION version 8.0.7 [Dah00]. Ce logiciel permet de calculer la trajectoire des particules chargées dans des potentiels électriques ou magnétiques à deux ou trois dimensions. L'utilisateur définit la géométrie des électrodes et SIMION détermine les potentiels via la résolution des équations de Laplace. Les effets de charge d'espace ne sont ainsi pas pris en compte. Les caractéristiques des particules peuvent être définies (masse, nombre, énergie cinétique, distribution, charge...). La géométrie est créée à partir d'une grille dont la dimension et le maillage sont modifiables par l'utilisateur.

Pour simuler le déviateur électrostatique, le maillage de la grille est choisi à 25 μm . Le dispositif expérimental simulé est composé des plaques de déviation, d'une plaque d'entrée avec un trou de diamètre 500 μm et enfin d'une plaque située à la sortie du déviateur permettant de définir un détecteur virtuel. La simulation est réalisée avec des ions aluminium et tantale pour explorer des gammes en temps de vol allant de la μs à une vingtaine de μs . Les ions sont émis avec une distribution en énergie continue et constante à partir de la zone d'interaction laser située à 50 cm du trou d'entrée du déviateur. Les ions sont distribués uniformément dans un cône d'angle $0,029^\circ$ afin de couvrir la fenêtre d'entrée du déviateur. On récupère l'ensemble des caractéristiques cinétiques des ions qui atteignent le détecteur virtuel (énergie cinétique, position, etc). La figure 4.28 présente la distribution en énergie cinétique des ions aluminium d'état de charge 11^+ qui sont sortis du déviateur pour une tension de déviation de 90 V.

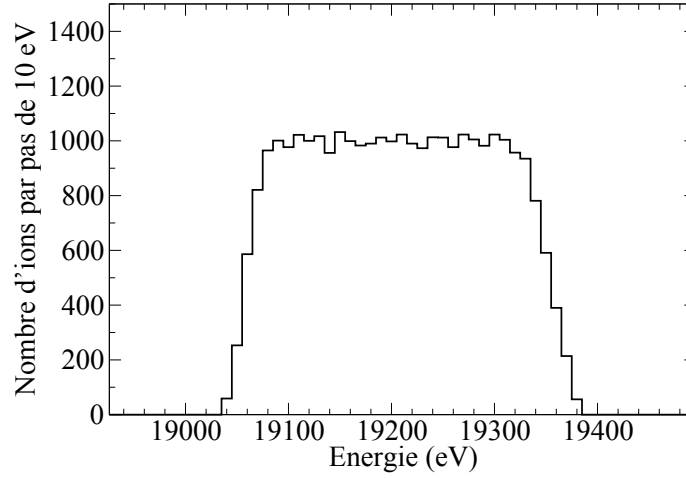


FIGURE 4.28 – Histogramme de l'énergie cinétique des ions aluminiums d'état de charge 11^+ qui sont sortis du déviateur.

Pour un état de charge donné, la résolution en énergie est déterminée par le rapport entre la largeur à mi-hauteur de la distribution en énergie et l'énergie cinétique moyenne. On réalise cette procédure pour dix états de charge et on montre que la résolution moyenne en énergie déterminée par SIMION est de : 1,54% avec un écart-type de 0,02% quelle que soit l'énergie cinétique de l'ion. Cette résolution est aussi indépendante de la tension de déviation. Cette valeur est assez proche des valeurs des résolutions qui sont attendues pour ce type de déviateur, typiquement autour de 1% à 2% [Eub63].

En relevant l'énergie minimale et maximale des ions à la sortie du déviateur, on peut déterminer l'histogramme des particules qui respectent ces bornes en énergie à son entrée. Le rapport de l'intégrale de cet histogramme avec celui des ions qui sont sortis du déviateur correspond à la transmission du déviateur sans prise en compte des effets de charge d'espace. La figure 4.29 a) présente l'histogramme des ions aluminium d'état de charge 11^+ en entrée qui respectent les bornes en énergie des ions qui sont sortis. La figure 4.29 b) présente l'évolution de la transmission en fonction de l'énergie de l'ion. La majorité des ions qui ne vont pas au bout du déviateur sont situés sur les extrémités de la gamme en énergie. Ainsi, la transmission théorique moyennée de notre déviateur (sans effet de charge d'espace) obtenue à partir des résultats des simulations pour 10 états de charge à la tension de déviation de 90V est de 86% avec un écart-type de 0,4%. On comparera cette valeur avec celle mesurée à l'issue de l'analyse dont le plan a été présenté au début de la partie 4.4.

4.4.1.2 Comparaison à la résolution expérimentale

Une comparaison directe des résolutions expérimentales et théoriques n'est pas possible avec notre dispositif expérimental. Nous ferons une comparaison des largeurs temporelles des paquets d'ions détectés en sortie du déviateur. Ces largeurs

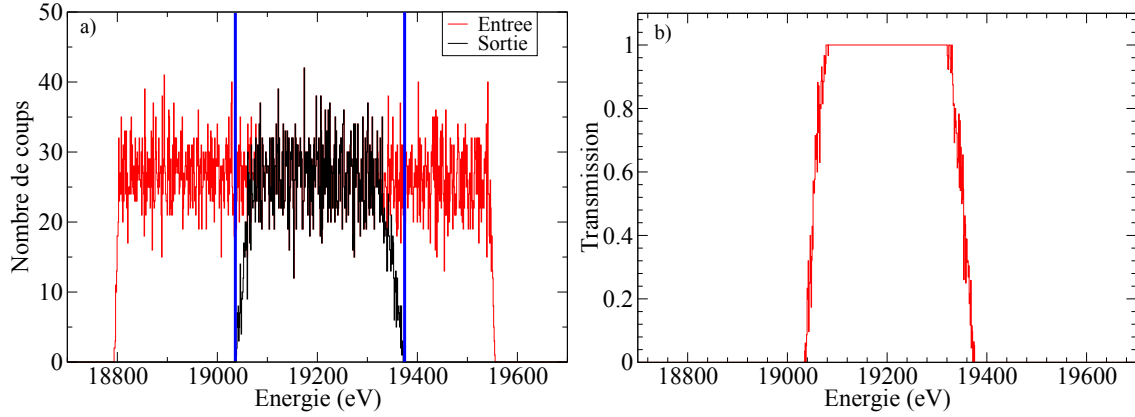


FIGURE 4.29 – Comparaison de l’histogramme en énergie des ions en entrée et en sortie du déviateur. La transmission est réalisée en faisant le rapport des deux histogrammes entre les bornes bleues. La figure b) représente la transmission en fonction de l’énergie.

temporelles dépendent de la résolution en énergie du dispositif. La largeur temporelle à mi-hauteur des pics, que l’on notera Δt_{exp} est composée de plusieurs contributions [Wor96] :

$$\Delta t_{\text{exp}}^2 \approx \Delta t_{\text{laser}}^2 + \Delta t_{\text{traj}}^2 + \Delta t_{\Delta E}^2 + \Delta t_{\text{WEM}}^2 + \Delta t_{\text{CE}}^2 \quad (4.24)$$

où Δt_{laser} est l’élargissement temporel dû à la durée d’émission des ions (9 ns), Δt_{traj} est l’élargissement correspondant aux différentes trajectoires des ions dans le déviateur, $\Delta t_{\Delta E}$ correspond à l’élargissement temporel dû à la dispersion en énergie des ions qui sortent du déviateur, Δt_{WEM} définit l’élargissement dû à la réponse de la WEM et enfin, Δt_{CE} est l’élargissement temporel du faisceau provoqué par les effets de charge d’espace.

L’étude réalisée avec SIMION tient compte de la dispersion temporelle due à Δt_{traj} et $\Delta t_{\Delta E}$. Pour comparer avec les mesures expérimentales, on rajoute une contribution due à la durée d’émission Δt_{laser} prise arbitrairement à 9 ns et une autre associée au temps de montée du signal WEM ($\Delta t_{\text{WEM}}=1$ ns). On compare ensuite la somme quadratique de ces contributions avec les résultats des mesures expérimentales. La figure 4.30 présente ainsi l’évolution de la largeur à mi-hauteur Δt des pics mesurée en fonction de leur temps de vol t pour les cibles d’aluminium, de cuivre et de tantale. Ces valeurs sont comparées aux valeurs théoriques.

Les largeurs à mi-hauteur des mesures sont généralement plus importantes que les largeurs théoriques. Cette différence vient de l’élargissement temporel généré par les effets de charge d’espace dans le déviateur. Lorsque le temps de vol est grand (supérieur à 10 μs), l’écart entre la théorie et l’expérience s’accroît car la vitesse de ces ions étant moins importante, l’influence des effets de charge d’espace sur la dispersion temporelle augmente.

Lorsque les temps de vol sont petits (de l’ordre de quelques μs), certaines largeurs expérimentales sont plus petites que les valeurs théoriques. Il se peut que l’élargisse-

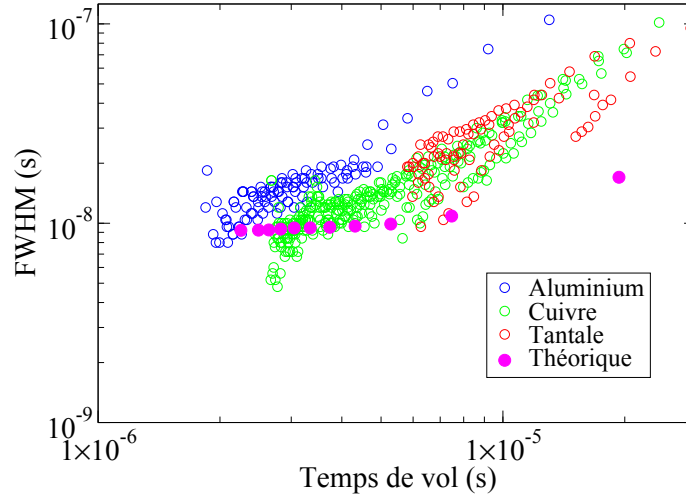


FIGURE 4.30 – Évolution de la largeur à mi-hauteur des pics en fonction du temps de vol expérimental pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale. Les valeurs théoriques prennent en compte une dispersion temporelle du paquet d'ions dû à la durée du laser (9 ns) et au temps de montée de la WEM (1 ns).

ment temporel dû à la durée du laser (prise à 9 ns) soit surestimé car les ions rapides, correspondant généralement aux états de charge élevés, sont sans doute produits lors du maximum de l'intensité laser (durée inférieure à 9 ns).

Notons que les largeurs expérimentales de l'aluminium sont plus importantes que le cuivre et le tantale. Nous montrerons que les effets de charge d'espace sont plus importants pour cet élément. Cependant, on observe que la variation de la largeur théorique avec le temps de vol est très proche qualitativement de la variation expérimentale.

4.4.1.3 Distribution ionique équivalente

En utilisant la résolution en énergie du déviateur déterminée à l'aide de SIMION ($\Delta E/E = 1,54\%$), on construit les distributions en énergie des ions pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale à partir de la relation (4.23) dans le cas où on considère un déviateur idéal ($T = 1$). Les figures 4.31, 4.32, 4.33 et 4.34 présentent respectivement les distributions en énergie des différents états de charge pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale.

Les distributions des trois éléments sont très différentes. On observe une corrélation entre l'état de charge et l'énergie de l'ion. Plus l'état de charge est élevé plus l'énergie cinétique moyenne de l'ion est importante. Ce même comportement est observé pour les trois cibles. De plus, les valeurs des états de charge maximum atteints sont différentes : 11^+ pour l'aluminium, 19^+ pour le cuivre et 7^+ pour le tantale. Les discussions autour de ces observations sont reportées dans la partie 4.5.2.

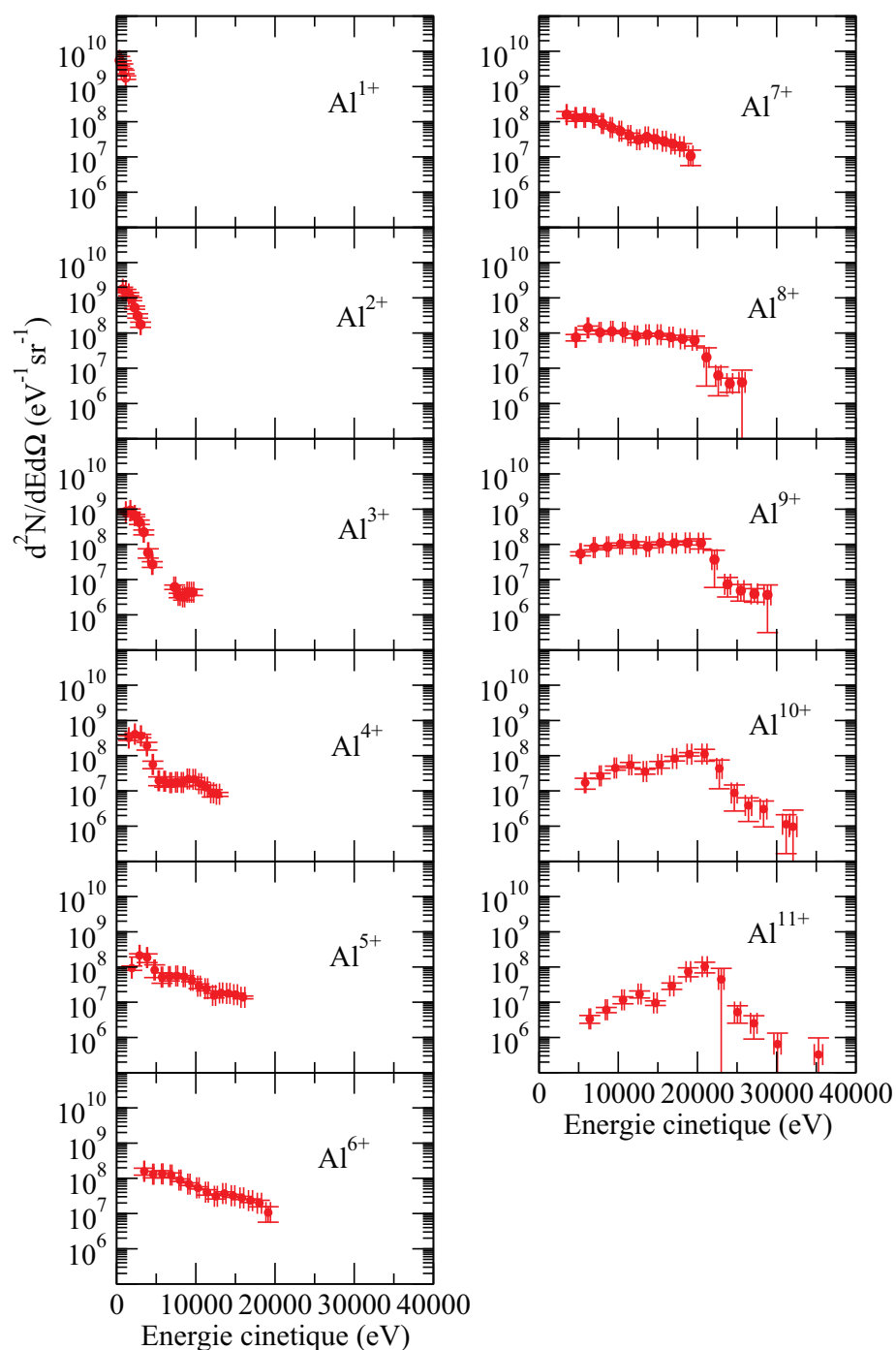


FIGURE 4.31 – Distribution en énergie "équivalente" des ions aluminium, d'états de charge 1^+ à 11^+ à l'entrée du déviateur qui est considéré comme idéal.

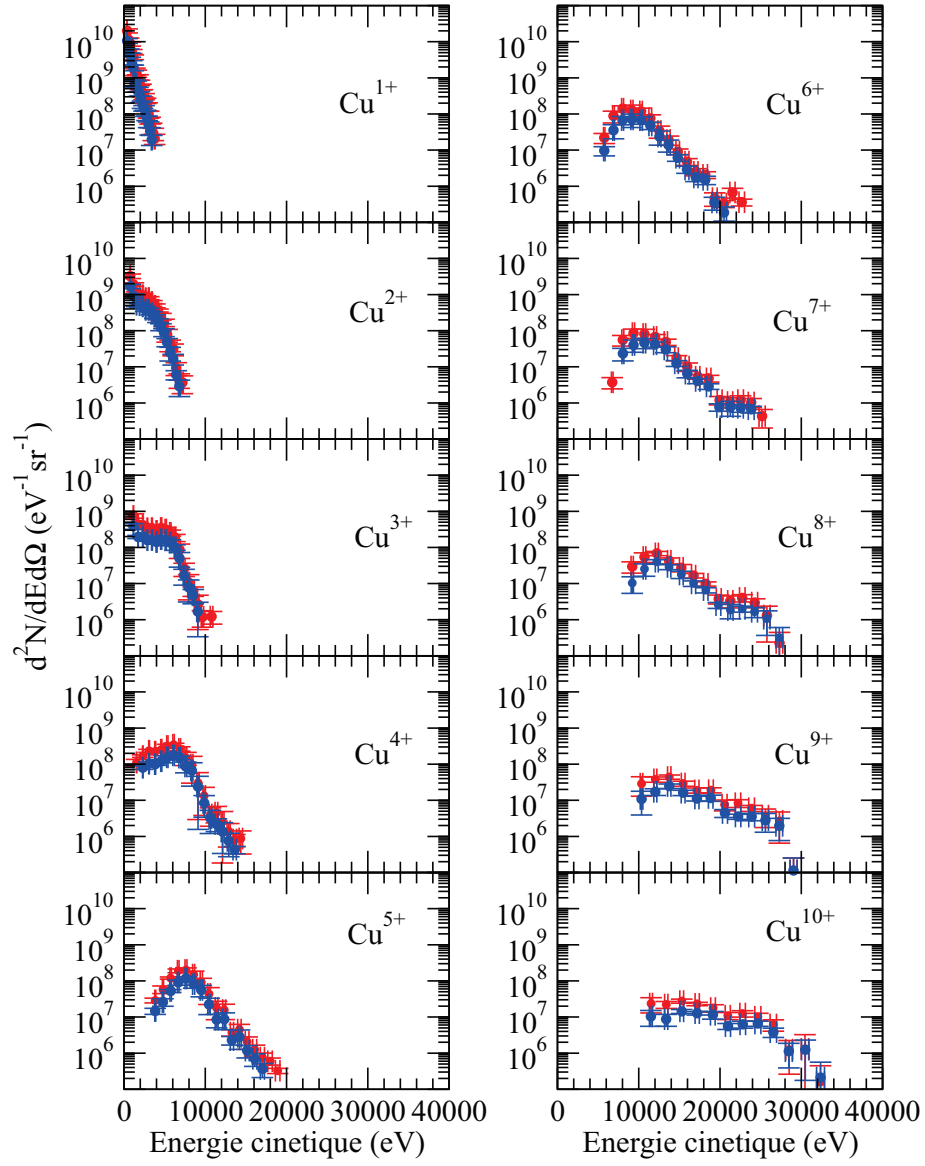


FIGURE 4.32 – Distribution en énergie "équivalente" des ions cuivre, d'états de charge 1⁺ à 10⁺ à l'entrée du déviateur qui est considéré comme idéal. La courbe rouge représente les ions de ⁶³Cu et la courbe bleue ceux du ⁶⁵Cu

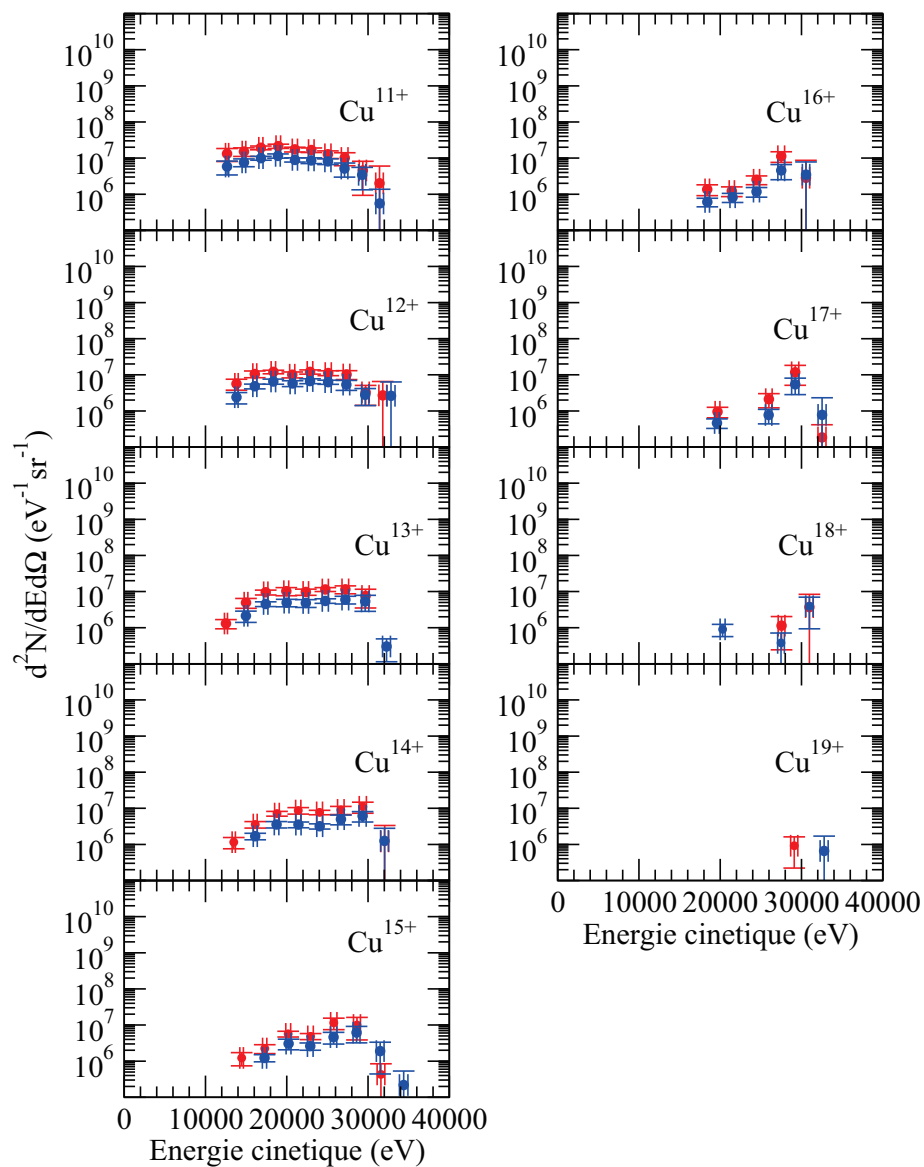


FIGURE 4.33 – Distribution en énergie "équivalente" des ions cuivre, d'états de charge 11^+ à 19^+ à l'entrée du déviateur qui est considéré comme idéal. La courbe rouge représente les ions de ^{63}Cu et la courbe bleue ceux du ^{65}Cu .

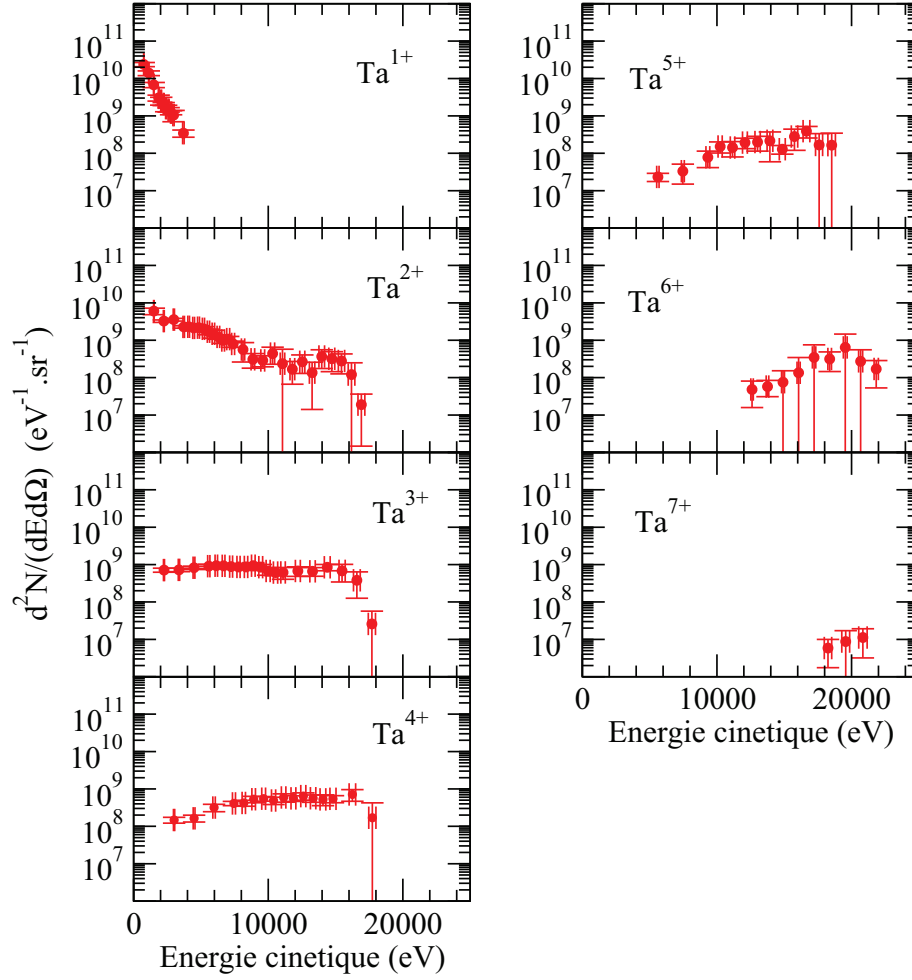


FIGURE 4.34 – Distribution en énergie "équivalente" des ions tantale à 10^{13} W/cm² à l'entrée du déviateur qui est considéré comme idéal.

4.4.2 Signal collecteur reconstruit et comparaison avec la mesure

Comme présenté au début de la partie, le second point de l'analyse nous menant à une mesure de la transmission consiste à construire un signal collecteur effectif et à le comparer avec le signal mesuré. Pour cela, il faut construire les distributions en temps de vol des ions à une distance égale à la distance de la cible au collecteur de charge ($d_{\text{cible-collecteur}}=14,3$ cm). Le signal du collecteur reconstruit, noté $I_{\text{coll}}^{\text{rec}}(t)$, s'exprime par :

$$I_{\text{coll}}^{\text{rec}}(t) = r\Omega_{\text{coll}} \sum_{Q=1}^{Q_{\text{max}}} Qe \frac{d^2 N_{eq}^Q(t)}{dt d\Omega} \quad (4.25)$$

où Ω_{coll} est l'angle solide du collecteur, Q l'état de charge de l'ion, r est l'impédance de l'oscilloscope et $\left(\frac{d^2 N_{eq}^Q}{dt d\Omega}\right)$ les distributions d'ions en temps de vol "équivalentes" à l'entrée du déviateur qui peuvent s'exprimer à partir des distributions d'ions en énergie "équivalentes" par :

$$\frac{d^2 N_{eq}^Q(t)}{dt d\Omega} = \frac{d^2 N_{eq}^Q(t)}{dE d\Omega} \frac{dE}{dt} = \frac{d^2 N_{eq}^Q(t)}{dE d\Omega} \frac{m_{\text{ion}} d_{\text{cible-collecteur}}^2}{t^3} \quad (4.26)$$

La figure 4.35 présente la comparaison entre le signal collecteur reconstruit (en bleu) et le collecteur expérimental (en rouge) situé dans la chambre pour les trois cibles (aluminium, cuivre et tantale). Une différence importante entre les deux signaux est observée. Le niveau de signal du collecteur reconstruit est toujours très inférieur à celui du collecteur expérimental. Par ailleurs, le maximum du signal collecteur reconstruit n'est pas situé au même instant que le maximum du collecteur de charge expérimental. Ces effets de distorsion ont été précédemment observés dans la littérature et sont généralement interprétés par des effets de charge d'espace dans le déviateur qui perturbent la déviation des ions les empêchant ainsi d'arriver au bout du déviateur [Fle65].

Les effets ont donc tendance à distordre les distributions des ions en sortie du déviateur. Les différences entre le signal collecteur reconstruit et expérimental sont d'autant plus importantes que l'intensité maximale du collecteur expérimental est importante. Dans la suite, on définit l'intensité surfacique maximale, notée J_{max} , à l'entrée du déviateur comme le rapport entre l'intensité maximale et la surface d'entrée du déviateur. L'intensité surfacique maximale à l'entrée du déviateur (donc à une distance de 50 cm de la zone d'interaction), déduite à partir de celle mesurée dans la chambre avec le collecteur de charge est, pour les trois types de cible :

- Aluminium : $J_{\text{max}} = 1,1$ A/cm²
- Cuivre : $J_{\text{max}} = 0,2$ A/cm²
- Tantale : $J_{\text{max}} = 0,04$ A/cm²

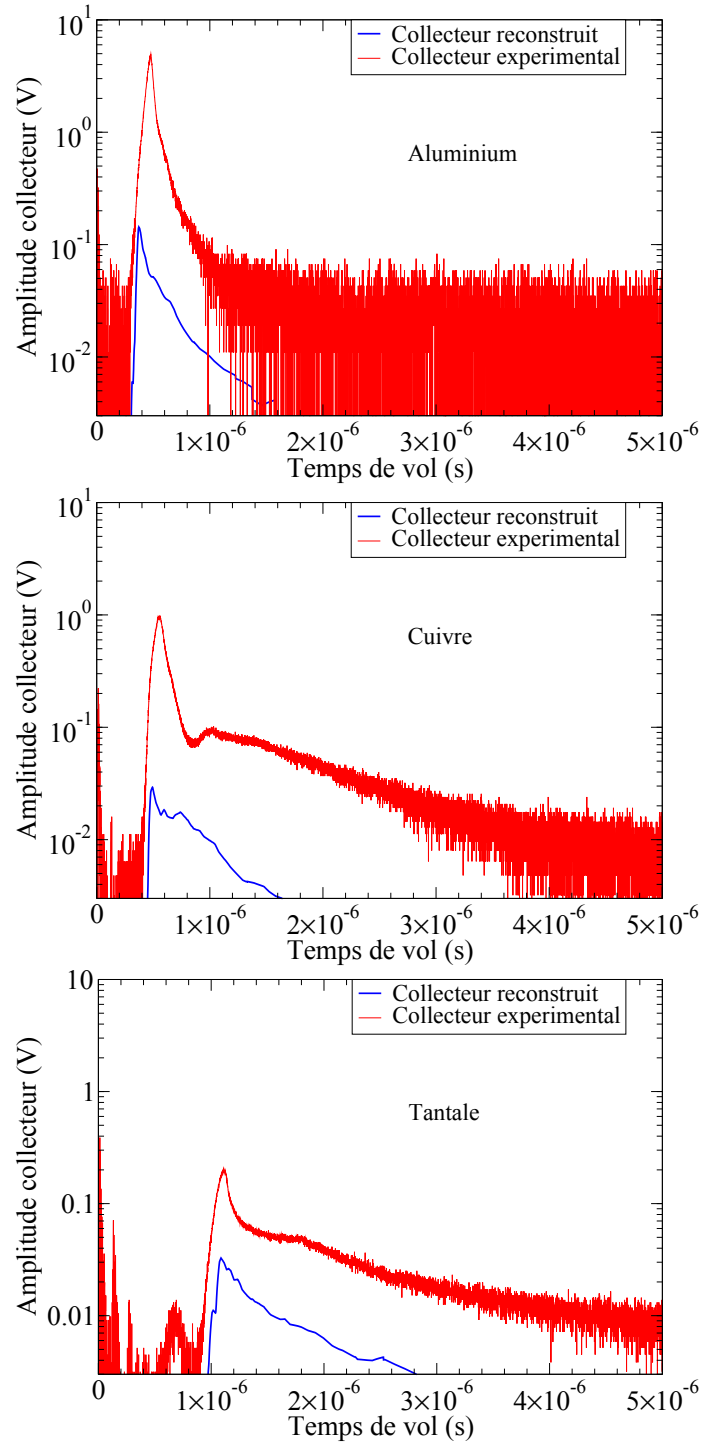


FIGURE 4.35 – Comparaison entre le signal collecteur expérimental situé dans le chambre et celui reconstruit à partir des mesures des distributions ioniques "équivalentes" avec le déviateur électrostatique pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale.

On constate que plus l'intensité surfacique à l'entrée du déviateur est importante plus la transmission est faible donnant encore un signe fort d'effets de charge d'espace.

4.4.3 Mesure de la transmission du déviateur en fonction de l'énergie et de l'intensité surfacique des ions

Pour un élément donné, la transmission du déviateur dépend a priori de l'énergie cinétique et de l'état de charge de l'ion. La transmission est définie par le rapport :

$$T_Q(E_{min}, E_{max}) = \frac{\frac{d^2 N_{eq}^Q}{dE d\Omega} dE}{\frac{d^2 N_{ent}^Q}{dE d\Omega} dE} \quad (4.27)$$

où le dénominateur correspond à la distribution en énergie des ions entrant dans le déviateur. Ce dénominateur est la quantité que l'on cherche à déterminer, il nous faut pour cela trouver un moyen d'obtenir un ordre de grandeur de la transmission par ailleurs.

Pour cela, on va s'appuyer sur le signal mesuré par le collecteur de charge qui somme les ions sur tous les états de charge à un instant de collection donné. Ainsi, dans la suite de ce chapitre, nous allons déterminer une transmission effective construite à partir du rapport entre le signal du collecteur reconstruit et celui mesuré, et ce, pour des intervalles en énergie de 500 eV. D'un point de vue analytique, cette transmission effective sera définie par :

$$T_{eff}(E) = \frac{r\Omega_{coll} \sum_Q Qe \int_{E-250\text{eV}}^{E+250\text{eV}} \frac{d^2 N_{eq}^Q}{dE d\Omega} dE}{I_{coll}^{exp}(E)} \quad (4.28)$$

où $I_{coll}^{exp}(E)$ est l'intégrale du signal collecteur mesuré entre les temps de vol t_{min} et t_{max} associés respectivement aux énergies cinétiques des ions comprises entre $E_{min} = E - 250$ eV et $E_{max} = E + 250$ eV. Notons que si la transmission $T_Q(E)$ était indépendante de l'état de charge Q (ce que nous n'avons pas pu montrer) alors la transmission effective T_{eff} tendrait vers la valeur de $T_Q(E)$. Par ailleurs, cette transmission effective n'a pas le statut de transmission moyenne. On peut en effet montrer que :

$$T_{eff}(E) \neq \sum_Q T_Q(E) P_Q(E) \quad (4.29)$$

où P_Q est la probabilité d'avoir l'état de charge Q à une énergie donnée.

La figure 4.36 présente les résultats des transmissions effectives obtenues. Chaque valeur de transmission est reliée à l'énergie de l'ion et au courant surfacique. Par exemple, dans le cas du cuivre, à une énergie de 10 keV, le courant surfacique est de 0,015 A/cm² ce qui donne une transmission effective de 19%.

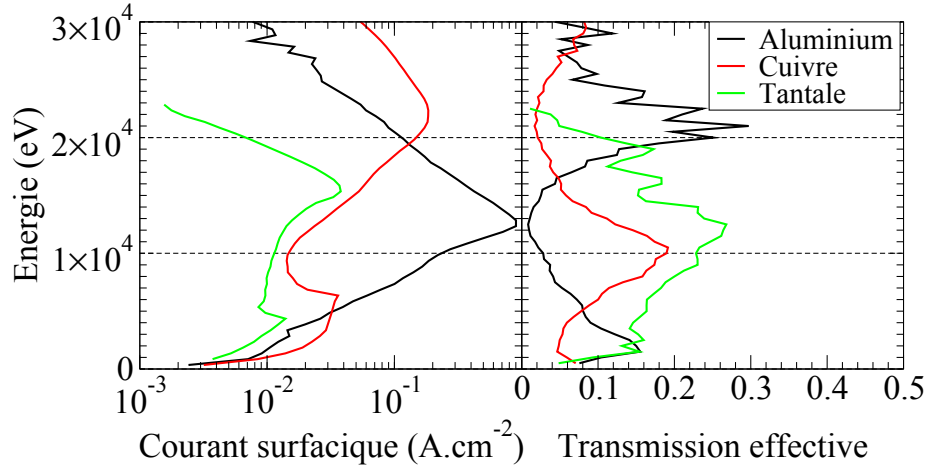


FIGURE 4.36 – Figure permettant de relier l’énergie cinétique de l’ion et le courant surfacique à la transmission effective à l’entrée du déviateur pour les trois éléments (aluminium, cuivre et tantale).

Cette étude montre clairement une corrélation entre transmission effective et courant surfacique : la transmission est minimale quand le courant surfacique est maximal. La transmission de notre déviateur paraît ainsi considérablement réduite du fait des effets de charge d’espace. Par ailleurs lorsque l’énergie cinétique est basse, la transmission diminue. Il en est de même pour les grandes énergies. Par ailleurs, quel que soit l’élément les transmissions effectives sont beaucoup plus faibles que celles déterminées par SIMION ($T=87\%$, cf. Partie 4.4.1.1).

Ces comportements observés peuvent être comparés aux résultats des simulations publiés dans la référence [Jin14]. Les auteurs utilisent un code PIC⁴ (logiciel CST) pour simuler l’effet des caractéristiques du faisceau de particules (courant surfacique, énergie et largeur des fentes dans le déviateur) sur la transmission relative d’un déviateur électrostatique de géométrie équivalente à la notre. Notons que les codes PIC sont basés sur la résolution des équations de Maxwell couplées aux équations de la dynamique et permettent d’étudier les effets de charge d’espace. La figure 4.37, issue de la référence [Jin14], présente par exemple la variation de la transmission relative pour des ions de tantale chargés 1^+ et 5^+ pour différentes largeurs de fente et courants surfaciques. Les conclusions de leur étude sont :

- à une intensité surfacique donnée, la transmission des ions dans le déviateur est meilleure à $2,5 \text{ keV/Q}$ qu’à 1 keV/Q : les ions les plus lents sont affectés plus fortement par les effets de charge d’espace,
- lorsque l’intensité surfacique augmente, la transmission chute à une valeur E/Q fixée. La diminution de la transmission avec l’intensité surfacique peut atteindre plus d’un facteur 2 pour des intensités de l’ordre de quelques

$\mu\text{A}/\text{mm}^2$ (ce qui équivaut à $0,1 \text{ mA}/\text{cm}^2$).

Par ailleurs les codes PIC pourraient être une alternative à la connaissance des transmissions $T_Q(E)$ (cf. équation 4.27). La transmission effective mesurée $T_{eff}(E)$ serait alors une observable expérimentale pour contraindre et valider les résultats de ces codes de calcul.

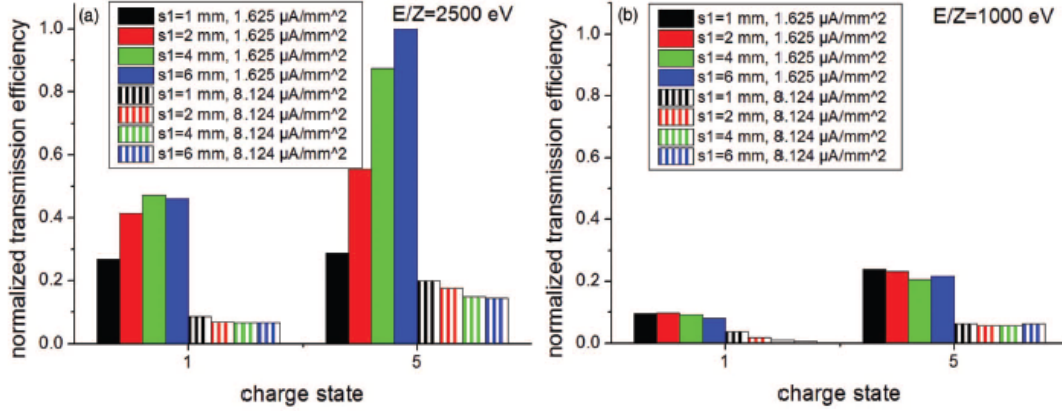


FIGURE 4.37 – Transmission normalisée en fonction de l’état de charge de l’ion pour a) un rapport énergie sur charge de 2500 eV et b) de 1000 eV. Le terme $s1$ désigne la largeur de la fente d’entrée. Les figures sont issues de la référence [Jin14].

Cette comparaison semble indiquer que la transmission de notre déviateur est fortement limitée à cause des effets de charge d’espace. Le courant surfacique maximum au niveau de notre déviateur (à 50 cm de la cible) est de $1 \text{ A}/\text{cm}^2$ pour l’aluminium, $0,2 \text{ A}/\text{cm}^2$ pour le cuivre et de $4 \times 10^{-2} \text{ A}/\text{cm}^2$ pour le tantale à $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$. Pour comparer avec les valeurs disponibles dans la littérature, le courant surfacique à l’entrée du déviateur peut être ramené à une distance de 1 m en utilisant la relation suivante [Kra12] :

$$j_{L_2} = (L_1/L_2)^3 j_{L_1} \quad (4.30)$$

où j_{L_1} et j_{L_2} sont les courants surfaciques mesurés respectivement aux distances L_1 et L_2 . Ainsi pour une distance de 1 m, le courant surfacique maximum à $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ serait de $0,13 \text{ A}/\text{cm}^2$ pour l’aluminium, $0,025 \text{ A}/\text{cm}^2$ pour le cuivre et $0,005 \text{ A}/\text{cm}^2$ pour le tantale. Dans la littérature, les mesures réalisées à $10^{15} \text{ W}/\text{cm}^2$ (énergie de 50 J, durée d’impulsion de 350 ps, longueur d’onde de 0,657 ou 0,438 μm et une tache focale de l’ordre de 80 μm de diamètre) pour différents éléments allant de $Z=27$ à $Z=83$ indiquent que le courant surfacique est de l’ordre de $0,030 \text{ A}/\text{cm}^2$ à 1 m de la cible [Lá03]. Ainsi, un dispositif expérimental (avec le déflecteur placé à 1 m de la cible) dont les effets de charge d’espace sont négligeables à $10^{13} \text{ W}/\text{cm}^2$ pour un plasma d’aluminium devrait l’être aussi lors des tirs sur des éléments lourds

à plus haute intensité. Réduire les effets de charge d'espace nécessite de diminuer le nombre d'ions entrant dans le déviateur et donc collimater encore davantage l'entrée du déviateur.

4.5 Caractéristiques des ions dans leur état asymptotique

4.5.1 Distribution en énergie corrigée et fraction ionique

Ces valeurs originales de transmission effective vont être utilisées pour corriger les distributions ioniques mesurées compte tenu de l'équation 4.23. A une énergie cinétique donnée, cette correction est la même quel que soit l'état de charge de l'ion. Les figures 4.38, 4.39, 4.40 et 4.41 présentent respectivement les distributions ioniques avec et sans prise en compte de la transmission effective dans le cas des cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale. Les corrections des distributions sont les plus importantes dans le cas de la cible d'aluminium où les courants surfaciques sont plus élevés.

A partir des distributions en énergie de chaque état de charge corrigées de la transmission, on peut déterminer la fraction ionique mesurée loin de la cible. Celle-ci est notée $F(Q)$ et est définie par la relation suivante :

$$F(Q) = \frac{\int \frac{d^2 N^Q}{dE d\Omega} dE}{\sum_{q=1}^{q=Q_{\max}} \int \frac{d^2 N^q}{dE d\Omega} dE} \quad (4.31)$$

La figure 4.42 présente les fractions ioniques déterminées dans cette étude (figure a) et celles mesurées dans la référence [Zha14]. Les auteurs de ce travail utilisent un laser Nd :YAG de longueur d'onde 1,06 μm , d'énergie 2,4 J répartie sur une durée de 8-10 ns. Ils estiment l'intensité sur cible aux alentours de 10^{12} W/cm². Les distributions sont ressemblantes sauf à bas état de charge où nos fractions ioniques sont plus élevées. Cette différence est majoritairement due à la prise en compte dans notre étude de la fonction de réponse de la WEM (basse pour les faibles états de charge et faibles énergies cinétiques) et de la transmission effective de notre déviateur. On observe deux populations d'ions pour l'aluminium et le cuivre alors que dans le cas du tantale nous n'avons qu'une population de faibles états de charge.

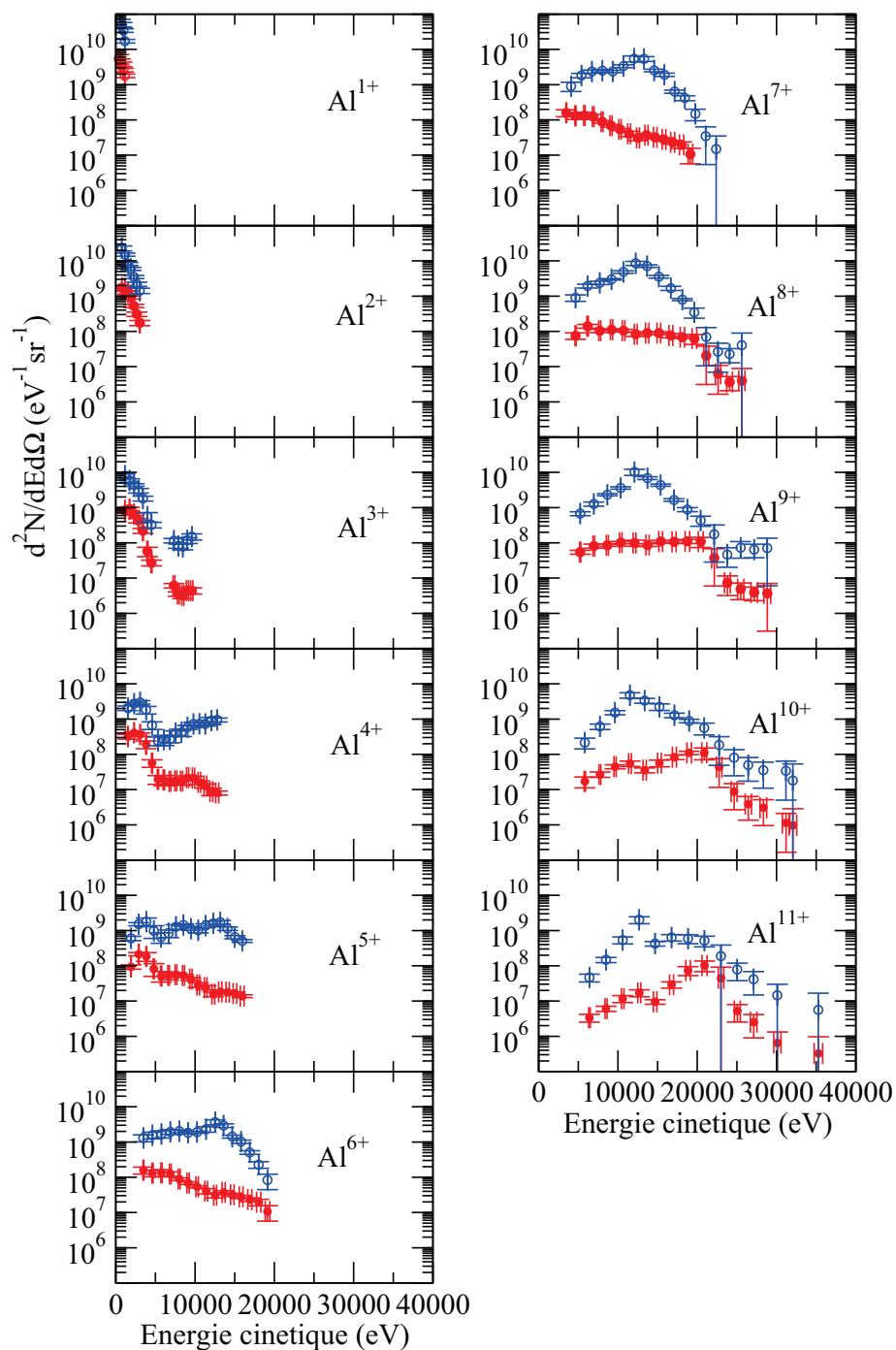


FIGURE 4.38 – Comparaison des distributions en énergie des ions aluminium d'états de charge 1^+ à 11^+ avec et sans prise en compte de la transmission effective (courbe bleue et rouge respectivement).

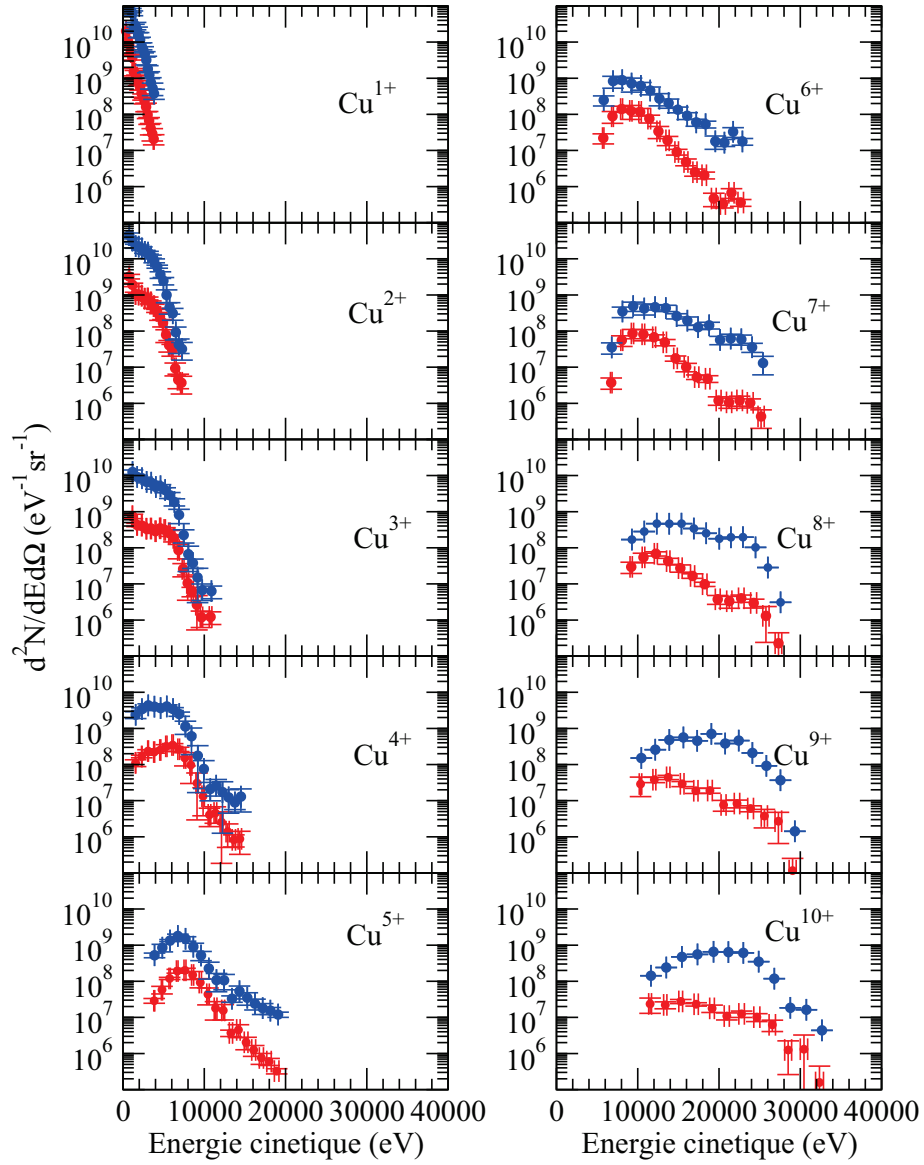


FIGURE 4.39 – Comparaison des distributions en énergie des ions cuivre (uniquement le cuivre 63) d'états de charge 1^+ à 10^+ avec et sans prise en compte de la transmission effective (courbe bleue et rouge respectivement).

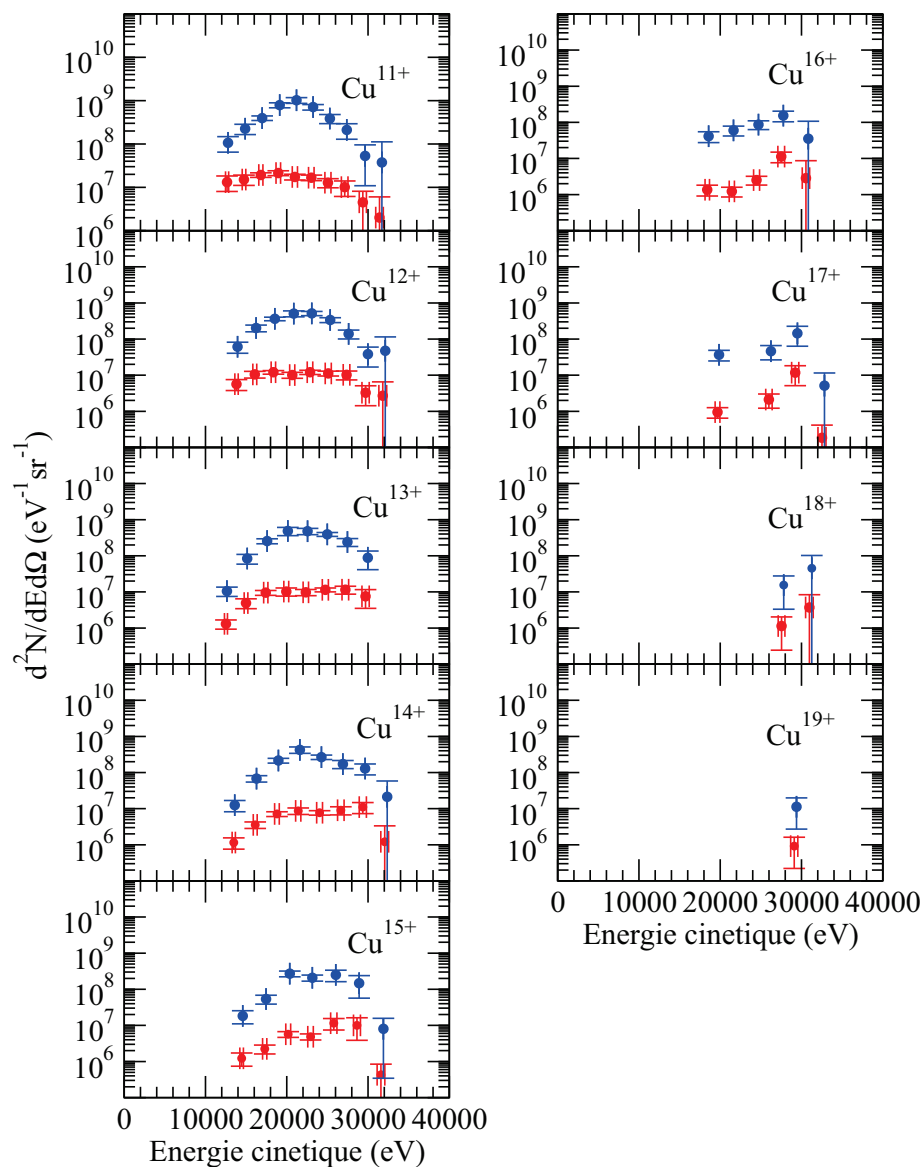


FIGURE 4.40 – Comparaison des distributions en énergie des ions cuivre (uniquement le cuivre 63) d'états de charge 11^+ à 19^+ avec et sans prise en compte de la transmission effective (courbe bleue et rouge respectivement).

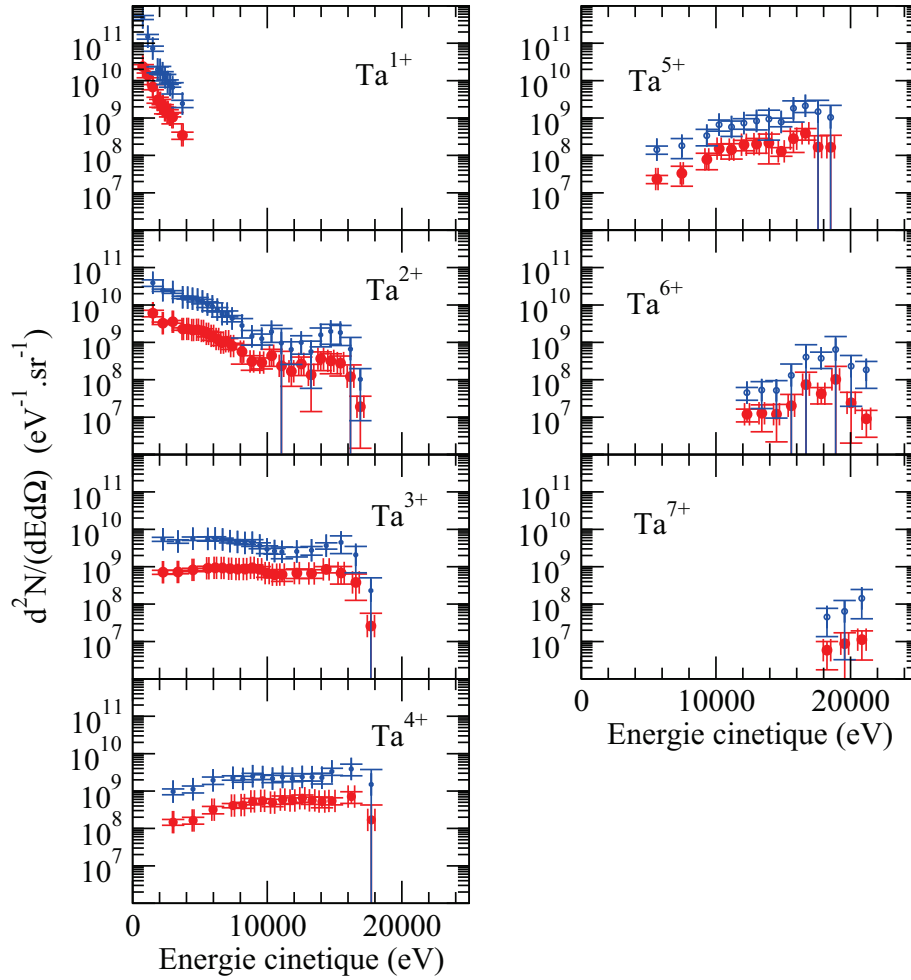


FIGURE 4.41 – Comparaison des distributions en énergie des ions tantale d'états de charge 1^+ à 7^+ , avec et sans prise en compte de la transmission effective (courbe bleue et rouge respectivement).

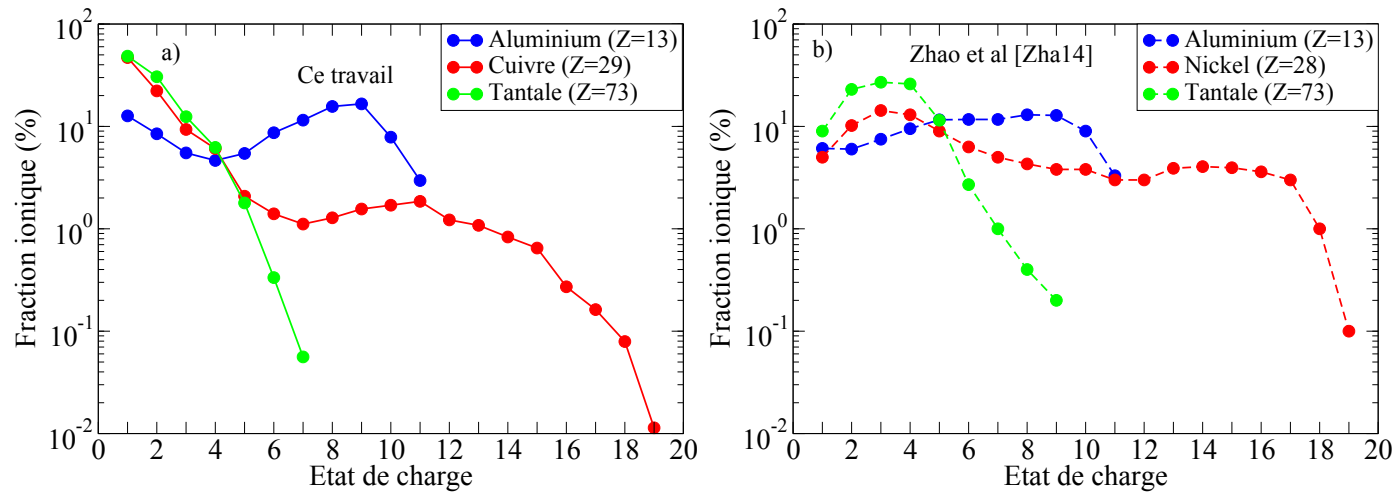


FIGURE 4.42 – Fractions ioniques déduites des mesures réalisées avec le déviateur électrostatique pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale dans ce travail en a) et celles mesurées issues de la référence [Zha14] sur les cibles d'aluminium, de nickel et de tantale en b).

La figure 4.43 présente la distribution totale des ions dans le cas de la cible d'aluminium, de cuivre et de tantale. Ces distributions sont déterminées en sommant les distributions de chaque état de charge entre elles. En intégrant ces distributions, on obtient le nombre total d'ions par stéradian produits à 10^{13} W/cm² pour les différentes cibles. Le tableau 4.6 compare les différentes valeurs obtenues. Le nombre d'ions par stéradian dépend assez peu du numéro atomique de l'élément, il est de l'ordre de 4×10^{14} ions.sr⁻¹. Lors d'une interaction laser, le plasma se détend généralement dans un cône de demi-angle d'ouverture d'environ 22° donnant un nombre total d'ions de 2×10^{14} ions.

Cette valeur peut être comparée à un calcul considérant que le laser forme un plasma sur une surface de cible correspondant à un cercle de 25 µm de diamètre et, sur une profondeur de 1 µm. Ce calcul d'ordre de grandeur donne un nombre d'ions de l'ordre de 10^{14} ions, valeur très similaire à celle mesurée.

	Al	Cu	Ta
$N_{\text{tot}} (\times 10^{14} \text{ sr}^{-1})$	3,8	2,8	4,8

TABLEAU 4.6 – Tableau comparant le nombre total d'ions émis par stéradian lors de l'interaction laser à 10^{13} W/cm² pour les cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale.

4.5.2 La recombinaison électronique

Les états de charge les plus élevés, notés Q_{max} , que nous avons mesurés loin de la cible sont pour les différentes cibles :

- Aluminium ($Z=13$), $Q_{\text{max}} = 11^+$
- Cuivre ($Z=29$), $Q_{\text{max}} = 19^+$
- Tantale ($Z=73$), $Q_{\text{max}} = 7^+$

L'état de charge maximum augmente entre l'aluminium et le cuivre mais chute brutalement pour le tantale. On rappelle par ailleurs (cf. figure 4.42) que l'on observe deux populations d'ions pour des tirs sur cible d'aluminium et de cuivre mais qu'une seule population pour le tantale. Le tableau 4.7 présente les valeurs des énergies de l'électron le moins lié⁵, noté E_b , pour un ion d'état de charge $(Q_{\text{max}} - 1)$ et Q_{max} mesuré.

L'énergie de liaison de l'électron le moins lié est de l'ordre de 450 eV pour l'aluminium 10^+ et autour de 2 keV pour l'aluminium 11^+ . Dans le cas du cuivre, les énergies sont de l'ordre de 700 eV pour le cuivre 18^+ et de 1,7 keV pour le cuivre 19^+ . Un gap en énergie est donc observé entre ces deux états de charge et le plasma n'est pas assez chaud pour arracher des électrons dont l'énergie de liaison est supérieure

5. voir www.nist.gov/pml/data/asd/cfm

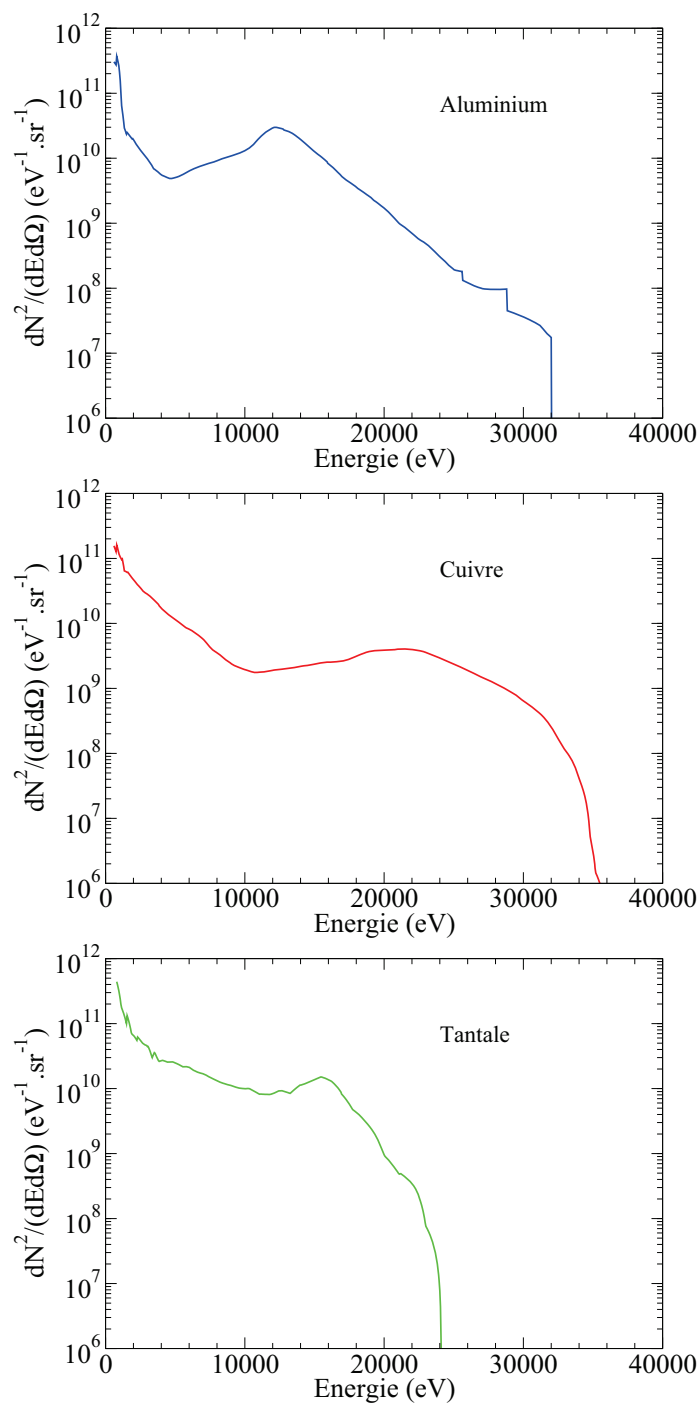


FIGURE 4.43 – Distribution totale des ions dans le cas des cibles d'aluminium, de cuivre et de tantale.

Élément	$(Q_{\max} - 1)/\text{couche}/E_b(\text{eV})$	$Q_{\max}/\text{couche}/E_b(\text{eV})$
$_{13}\text{Al}$	10 / L / 442	11 / K / 2086
$_{29}\text{Cu}$	18 / M / 670	19 / L / 1690
$_{73}\text{Ta}$	6 / O / 139	7 / O / 159

TABLEAU 4.7 – Comparaison des énergies de liaison de l'électron le moins lié des états de charge ($Q_{\max}-1$) et Q_{\max} ainsi que la couche atomique correspondante.

au keV. Ce résultat est très différent pour un plasma de tantale où les énergies de liaison des électrons, pour des ions de tantale 7^+ et 8^+ sont très similaires.

La variation de l'ionisation dans un plasma est normalement croissante avec le numéro atomique de l'élément [Col73]. En utilisant les relations de Colombant et Tonon [Col73] (cf. Chapitre 3 Partie 3.2), l'état de charge moyen, à 10^{13} W/cm², serait de l'ordre de 18^+ pour le cuivre et de 26^+ pour le tantale. L'absence d'ions dans ces hauts états de charge dans l'état asymptotique s'explique par les processus de recombinaison qui ont lieu lors de la détente du plasma. Le taux de ces processus dépend de la densité d'électrons libres. Cette densité étant plus élevée dans un plasma de tantale, la recombinaison y est plus importante que dans un plasma de cuivre ou d'aluminium [Rou96].

La figure 4.44 présente l'état de charge maximum mesuré en fonction du numéro atomique de la cible pour différentes intensités lasers. A haute intensité ($I \geq 10^{14}$ W/cm²), des expériences ont montré que des états de charge élevés subsistent à longue distance de la cible sur les éléments de numéro atomique élevé [Lá03, Sha99, Kra03]. Pour des intensités supérieures ou égales à 10^{14} W/cm², l'énergie laser peut être absorbée par des phénomènes non linéaires (par exemple l'absorption résonante). Ces processus génèrent des populations d'électrons supra-thermiques. Il se crée alors un champ électrique fort qui accélère les ions leur permettant de s'échapper du plasma avant qu'ils n'aient eu le temps de se recombiner [Lá03].

4.5.3 Vers un choix de tensions du déviateur pour des études à plus hautes intensités

Pour atteindre les états de charge d'intérêt loin de la cible de mercure ($Q > 30^+$), l'intensité laser doit être d'au moins 10^{14} W/cm². A ces intensités en régime nano-seconde, les lasers ont généralement un faible taux de répétition. Le laser que nous devons utiliser sur le site de Bruyères-le-Châtel a un taux de répétition de 1 mn pour une énergie de 40 J. Comme nous l'avons déjà signalé, des problèmes liés au laser ne nous ont pas permis de réaliser les tirs que nous espérions. Sur l'installation laser du LULI2000 de l'École Polytechnique, qui permet d'atteindre des intensités supérieures à 10^{14} W/cm², le taux de répétition est de l'ordre de un tir par heure. L'utilisation du déviateur électrostatique dans ces conditions nécessite d'être prédictif sur le choix des tensions de déviation à appliquer. Nous verrons qu'à partir d'une

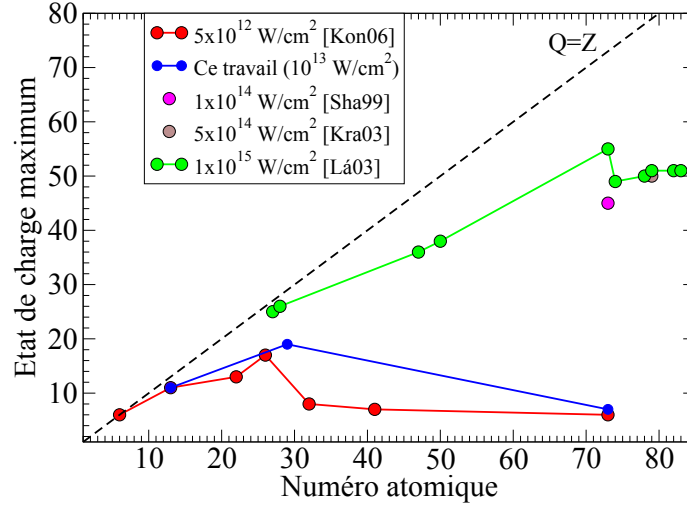


FIGURE 4.44 – Évolution de l'état de charge maximum observé en fonction du numéro atomique de l'élément pour différentes intensités lasers.

modélisation des distributions ioniques de type Maxwell-Coulomb, des lois d'échelle semblent se dégager en s'appuyant sur les résultats de différents travaux.

4.5.3.1 Distribution de Maxwell-Coulomb

Dans la littérature, il est montré que les distributions ioniques produites dans les plasmas avec des lasers ns peuvent être généralement ajustées par une fonction appelée distribution de Maxwell-Coulomb [Tor02, Tor06a, Tor06b] :

$$\frac{d^2 N^Q}{dv d\Omega}(v) = A \left(\frac{m_{ion}}{2\pi k T_{ion}} \right)^{3/2} v^3 \times \exp \left(-\frac{m_{ion}}{2k T_{ion}} (v - v_k - v_c)^2 \right) \quad (4.32)$$

avec le terme A lié au nombre total d'ions, T_{ion} la température effective des ions dans le plasma et m_{ion} la masse de l'ion. Le terme v_k désigne la vitesse d'expansion du centre de masse du plasma que l'on considère en première approximation comme adiabatique [Tor02]. Le terme v_c , appelé vitesse coulombienne, tient compte du fait que les ions ayant les états de charge les plus élevés ont la vitesse la plus importante du fait de la répulsion coulombienne. La figure 4.45 présente l'évolution de l'énergie cinétique moyenne des ions en fonction de leur état de charge que l'on a mesurée lors de tirs sur la cible de tantale.

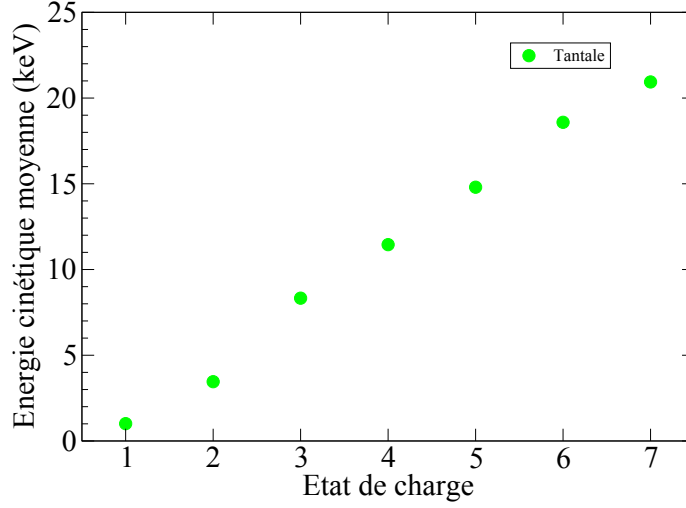


FIGURE 4.45 – Évolution de l'énergie moyenne des ions tantale en fonction de leur état de charge.

L'énergie des ions augmente d'à peu près 3 keV par état de charge. On peut ainsi supposer que les ions subissent une accélération sous l'effet d'un potentiel électrique de l'ordre de 3 kV. Il est montré que ces deux vitesses v_k et v_c s'expriment par [Sib91, Kel92] :

$$\begin{aligned} v_k &= \sqrt{\frac{\gamma k T_{\text{ion}}}{m_{\text{ion}}}} \\ v_c &= \sqrt{\frac{2QeV_0}{m_{\text{ion}}}} \end{aligned} \quad (4.33)$$

avec T_{ion} la température ionique effective, V_0 le potentiel d'accélération effectif, Q l'état de charge de l'ion et γ est le coefficient adiabatique ($\gamma=5/3$). On dispose ainsi de trois paramètres d'ajustement : A , T_{ion} et v_k+v_c .

Chaque distribution en vitesse que l'on a mesurée et corrigée de la transmission effective du déviateur, peut être ajustée par cette fonction. La figure 4.46 présente les ajustements des données mesurées avec la cible de tantale. Ces ajustements sont représentatifs au premier ordre des mesures expérimentales corrigées.

4.5.3.2 Potentiel et température effectifs des ions du plasma

A partir de l'ensemble des résultats des paramètres d'ajustement T_{ion} et v_k+v_c de chaque distribution, on déduit un potentiel effectif moyen ($V_0 = 3100 \pm 1800$ V) et une température ionique effective moyenne ($T_{\text{ion}} = 830 \pm 480$ eV). La figure 4.47 présente la comparaison sur le tantale des températures effectives et des potentiels effectifs en fonction de l'intensité laser dans le cas de ce travail et des résultats que l'on peut trouver dans la littérature [Tor02, Tor06a, Tor06b]. Nos résultats s'insèrent bien dans la tendance formée par les résultats de ces auteurs. L'ensemble des points semblent

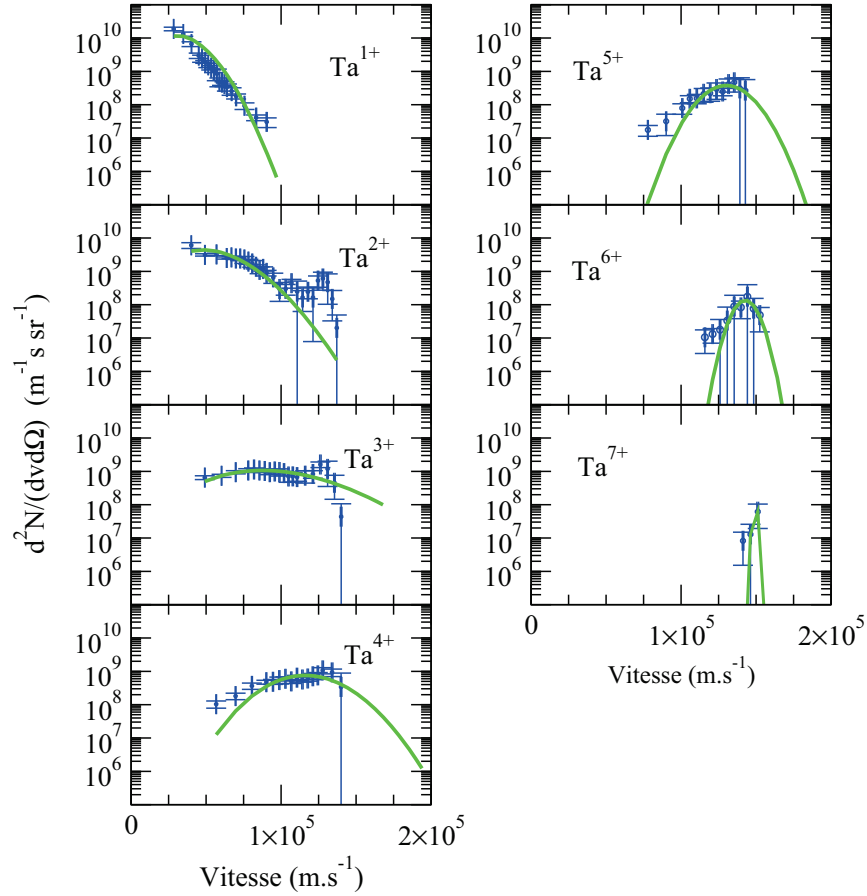


FIGURE 4.46 – Ajustement par la fonction Maxwell-Coulomb des distributions en vitesse obtenues sur la cible de tantale à 10^{13} W/cm².

présenter un comportement linéaire en échelle log-log, ce qui serait représentatif d'une loi de puissance (ajustement représenté par des traits noirs).

Compte tenu des ajustements on déduit la température effective et le potentiel effectif à 10^{14} W/cm² qui sont respectivement de 2220 eV et 5200 V. Ces valeurs du potentiel effectif et de la température effective nous permettent d'estimer les distributions en énergie des ions pour une intensité laser de 10^{14} W/cm² s'ils sont présents dans leur état asymptotique. La figure 4.48 présente les distributions des ions à 10^{14} W/cm² pour des états de charge de 10^+ à 50^+ sur le tantale. Compte tenu de la faible différence de numéro atomique entre le tantale et le mercure on peut considérer que les distributions seraient assez peu différentes dans le cas d'un plasma de mercure. Les ions d'états de charge les plus élevés ont a priori des énergies cinétiques situées entre 200 keV et 400 keV. Ainsi, pour détecter les ions d'états de charge supérieurs à 30^+ il faudrait a priori travailler aux tensions de déviation qui sont listées dans le tableau 4.8 et qui permettraient de mesurer les maxima des distributions en énergie des états de charge associés.

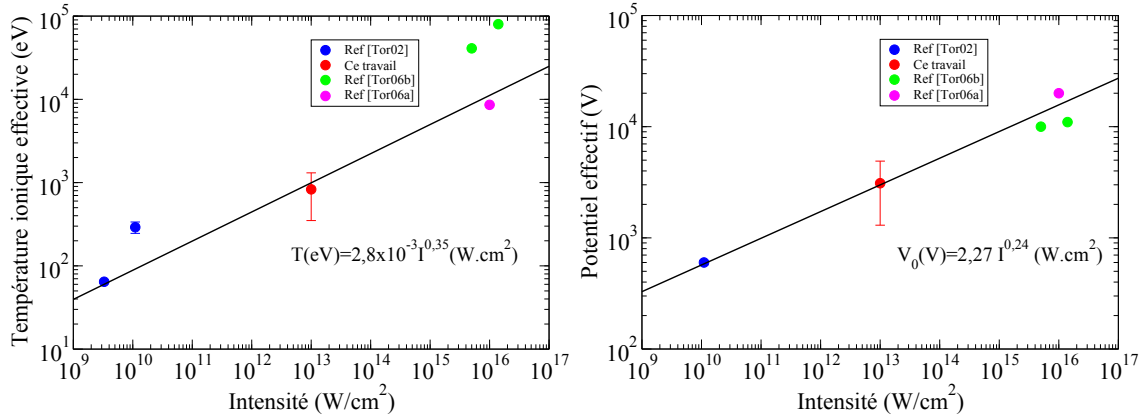


FIGURE 4.47 – Variation de la température ionique effective et du potentiel effectif en fonction de l'intensité laser.

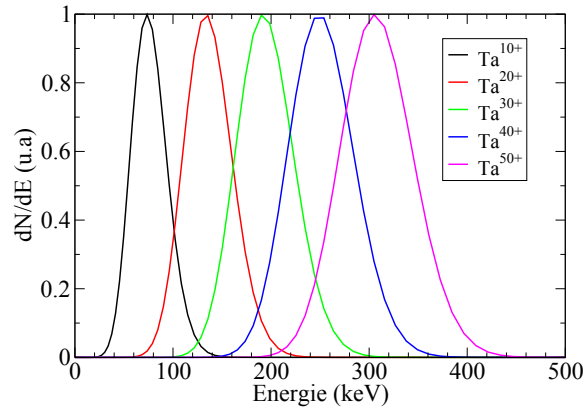


FIGURE 4.48 – Distribution en énergie des ions tantaies à $10^{14} \text{ W}/\text{cm}^2$ pour des états de charge de 10^+ à 50^+ .

4.6 Conclusion du chapitre

Le but de ce chapitre était de mettre en place un protocole expérimental pour mesurer les distributions en énergie de chaque état de charge dans leur état asymptotique. L'enjeu était de caractériser le dispositif expérimental de sorte à pouvoir ensuite l'utiliser sur des installations laser à plus haute intensité. Sur ces installations, il doit permettre de vérifier si des états de charge asymptotiques supérieurs à 30^+ sont atteints et donc si les conditions requises pour une mesure de l'excitation du ^{201}mHg est possible. Si cette première étape est remplie, cela nous permettrait d'être prédictif sur le nombre d'isomères détectables.

A ce stade de l'étude, nous avons un déviateur électrostatique qui est validé du point de vue de la cinématique. Nous avons déterminé la fonction de réponse de la WEM pour des ions d'états de charge compris entre 1^+ et 11^+ pour l'aluminium, 1^+ et 18^+ pour le cuivre et 1^+ à 7^+ pour le tantale, sur une gamme en énergie

Q	E (keV)	Tension du déviateur (V)
30	190	329
35	220	325
40	250	325
45	280	323
50	300	312

TABLEAU 4.8 – Tensions du déviateur nécessaires pour mesurer des ions de tantale d'états de charge 30^+ à 50^+ au bout du déviateur compte tenu de leur distribution en énergie de la figure 4.48.

cinétique comprise entre 1 keV et 30 keV. Nous avons mis en évidence les effets de charge d'espace au sein de notre déviateur, ceux-ci affectant la transmission de ce dernier. Nous avons ainsi déterminé une transmission effective en fonction de l'énergie cinétique des ions pour les différents éléments en se basant sur le signal intégré en temps du collecteur de charge. Les distributions en énergie des ions ont été ainsi corrigées de cette transmission afin d'avoir des ordres de grandeur du nombre d'ions dans les états asymptotiques.

Les distributions d'ions tantale ont été ensuite ajustées par les distributions de type Maxwell-Coulomb ce qui nous a permis de mettre en évidence une loi d'échelle à partir des ajustements réalisés à différentes intensités laser dans la littérature [Tor02, Tor06a, Tor06b]. Le numéro atomique du tantale étant proche de celui du mercure, nous pouvons être prédictif pour le choix des tensions de déviation à utiliser à une intensité de 10^{14} W/cm² ou autre (en régime laser ns), pour détecter les ions d'états de charge supérieurs à 30^+ .

Cette étude doit être maintenant étendue à plus haute intensité. La fonction de réponse doit être déterminée à plus haute énergie et pour des états de charge jusqu'à 50^+ . Un moyen serait de déterminer les taux de production des électrons secondaires de l'électrode de conversion [Can73] vu les corrélations observées dans ce travail entre ces taux et les fonctions de réponse.

La transmission du déviateur doit être améliorée en prévision d'une expérience à 10^{14} W/cm². Pour cela, il faudrait dans un premier temps améliorer la transmission dans le cas de la cible d'aluminium à 10^{13} W/cm². Pour un déviateur placé à 1 m de la cible, diminuer la fente d'entrée est une option possible. L'utilisation d'un code PIC, tel que le logiciel CST [Jin14], peut nous permettre d'améliorer notre connaissance de la transmission de notre déviateur en fonction de l'état de charge des ions et de leur énergie cinétique.

Une fois ces points résolus, la prochaine étape serait de trouver la bonne installation laser pour atteindre des états de charge supérieurs à 30^+ loin de la cible. N'oublions pas qu'il faut aussi s'assurer que les états de charge résonants favorables pour l'excitation par effet NEET ($Q \geq 42^+$) soient atteints dans le plasma. Cette mesure peut être réalisée par spectroscopie X du plasma à l'aide d'un cristal de Bragg à des intensités de l'ordre de 10^{14} W/cm² [Bus85, BA86].

Conclusion

Ce travail de thèse a consisté au dimensionnement d'une expérience de mise en évidence de l'excitation nucléaire par effet NEET (Nuclear Excitation by Electronic Transition) du premier état excité du ^{201}Hg créé par l'interaction d'un faisceau laser et d'une cible de mercure. Ce niveau nucléaire de très faible énergie d'excitation possède une demi-vie de 81 ns. Ce travail est séparé en trois parties dont nous allons rappeler les points importants.

La première partie de ce travail a été consacrée au calcul du taux d'excitation nucléaire par effet NEET du ^{201m}Hg dans un plasma à l'équilibre thermodynamique.

Dans un premier temps, nous avons calculé le taux NEET dans le cadre du modèle de l'atome moyen gaussien (AMG), à l'équilibre thermodynamique, pour une densité de 10^{-2} g/cm^3 . Ce modèle permet de calculer le taux NEET à partir d'une description statistique du spectre des transitions atomiques. Pour des températures de plasma comprises entre 200 eV et 400 eV (état de charge moyen compris entre 40^+ et 50^+) les taux calculés sont compris entre 10^3 et 10^4 s^{-1} .

Afin de déterminer les zones du plan densité-température pour lesquelles le modèle de l'AMG est pertinent, nous avons comparé le modèle de l'AMG avec le code de physique atomique MCDF (Multi Configuration Dirac Fock) sur le spectre atomique de la transition radiative E2, $6p_{1/2}-4p_{3/2}$, pour des états de charge compris entre 47^+ et 51^+ . Il a été ainsi montré que l'approximation gaussienne est pertinente lorsque l'écart en énergie entre deux raies est plus petit que la largeur individuelle d'une raie. Cette condition est vérifiée pour des états de charge inférieurs à 49^+ .

Pour quantifier les fluctuations du taux NEET autour de la valeur moyenne donnée par l'AMG, nous avons développé un code, appelé ADAM. Il permet de calculer les taux d'excitation par effet NEET en éclatement de configurations autour de l'atome-moyen. Les résultats de cette comparaison ont montré que les fluctuations autour de l'atome moyen sont faibles lorsque l'état de charge moyen du plasma est situé autour de 42^+ . Par contre, lorsque l'état de charge moyen augmente, les taux NEET sont sujets à de fortes dispersions qui peuvent être dues à un artefact du modèle ADAM. Pour les très grands états de charge, comme l'ont montré les comparaisons entre MCDF et l'AMG, l'atome moyen surestime considérablement les taux d'excitation à cause du très faible nombre de configurations mis en jeu.

Le calcul du taux NEET étant limité par l'incertitude sur les énergies de transitions atomiques calculées, cette méthode originale a montré que l'intervalle de confiance sur le taux NEET est de l'ordre d'un facteur deux autour du taux moyen pour les états de charge moyens autour de 42^+ .

Le modèle ADAM peut être amélioré sur plusieurs points. Actuellement, un calcul DCA (*Detailed Configuration Accounting*) avec toutes les couches atomiques est hors de portée lorsque l'état de charge est trop faible. Un critère basé sur le nombre

d'électrons excités permettrait de sélectionner les configurations qui ont seulement deux ou trois électrons excités par rapport à la configuration fondamentale. Cette méthode nous permettrait de pouvoir calculer les transitions impliquant des électrons sur des couches supérieures à la couche P.

La méthode d'éclatement de configurations autour de l'atome-moyen souffre du problème de la variation de l'énergie de la transition avec la température du plasma. Afin de réduire cet effet, il serait envisageable de calculer, pour chaque transition atomique et pour chaque état de charge, un potentiel auto-cohérent pour la configuration la plus probable et de l'appliquer ensuite pour les autres configurations initiales. Cela réduirait fortement les fluctuations du calcul ADAM dues à cet artefact.

Dans le cadre de la thèse de D. Denis-Petit [DP14], le formalisme pour calculer le taux NEET en multi-configuration a été développé. Une extension du modèle ADAM en le couplant avec MCDF pourrait être réalisée. Le code ADAM permettrait de sélectionner les configurations qui ont des transitions atomiques proches de la transition nucléaire. Ces configurations pourraient être ensuite calculées avec MCDF afin d'obtenir un taux NEET en multi-configuration. Le taux NEET calculé tiendrait ainsi compte du couplage jj .

La deuxième partie de ce travail était dédiée à l'estimation du nombre de noyaux excités produits lors d'une interaction laser matière pour le dimensionnement d'une expérience. Pour réaliser cette estimation, les taux NEET ont été calculés dans le modèle de l'AMG à l'ETL et ont été couplés avec le code hydrodynamique Chivas avec la méthode de la température d'ionisation.

Les résultats ont montré qu'environ 10^7 isomères sont formés lors de l'interaction d'un laser à une intensité de 2×10^{14} W/cm² sur une cible pure de mercure 201. Compte tenu des incertitudes dues aux différentes approximations effectuées, la valeur de 10^6 isomères est conservée pour le dimensionnement d'une expérience à cette intensité.

Finalement, la dernière partie de ce travail de thèse était destinée au développement et à la caractérisation d'un dispositif expérimental pour la mesure des états de charge asymptotiques produits lors d'une interaction laser. Cette mesure a été réalisée avec un déviateur électrostatique qui a été caractérisé sur un laser Nd :YAG au CENBG à une intensité de 10^{13} W/cm². La mesure des ions en sortie du déviateur est réalisée par une WEM pour laquelle la fonction de réponse a été obtenue sur une gamme en énergie de 1 keV à 30 keV pour des ions aluminium, cuivre et tantale.

En mesurant les distributions en énergie à la sortie du déviateur et en les confrontant avec le signal intégré d'un collecteur de charge, nous avons mis en évidence de forts effets de charge d'espace qui affectent la transmission du déviateur. Cette transmission est d'autant plus faible que le courant surfacique à l'entrée du déviateur est important.

Une transmission effective pour les différents éléments (aluminium, cuivre et tantale) en fonction de l'énergie cinétique et du courant surfacique a été déterminée en

se basant sur le signal du collecteur de charge. Cette transmission effective nous a permis de corriger les distributions ioniques asymptotiques afin de déterminer un ordre de grandeur du nombre d'ions dans leur état asymptotique.

Enfin, à partir des mesures de distributions d'ions tantale à différentes intensités laser réalisées dans la littérature, nous avons mis en évidence des lois d'échelle en ajustant les distributions par des distributions de type Maxwell-Coulomb. Nous pouvons ainsi être prédictif dans le choix des tensions de déviation à utiliser dans le cas de mesures à plus haute intensité laser.

La prochaine étape est de mesurer les distributions d'ions asymptotiques produites à plus haute intensité laser ($I \geq 10^{14}$ W/cm²). Pour cela, la fonction de réponse de la WEM doit être déterminée pour des états de charge supérieurs à 30⁺ et des énergies cinétiques de l'ordre de quelques centaines de keV. De plus, des mesures de spectroscopie X permettraient de s'assurer que les états de charge supérieurs à 42⁺ sont atteints dans le plasma.

Bibliographie

- [Ahm00] I. Ahmad, R. W. Dunford, H. Esbensen, D. S. Gemmell, E. P. Kanter, U. Rütt and S. H. Southworth, Nuclear excitation by electronic transition in ^{189}Os , Phys. Rev. C, **61**, 5; 051304– (2000).
- [Alb99] J. R. Albritton and B. G. Wilson, Non-LTE Ionization and Energy Balance in High-Z Laser Plasmas Including Two-Electron Transitions, Phys. Rev. Lett., **83**, 8; 1594–1597 (1999).
- [Alb00] J. Albritton and B. Wilson, NLTE ionization and energy balance in high-Z laser-plasmas including two-electron transitions, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **65**, 1-3; 1–13 (2000).
- [Ale07] M. M. Aleonard *et al.*, Energetic electrons produced in the interaction of a kiloHertz femtosecond laser with tantalum targets, J. Mod. Opt., **54**, 16-17; 2585–2593 (2007).
- [And97] A. Andreev, V. Gordienko, A. Savel'ev, E. Tkalya and A. Dykhne, Excitation of nuclei in a hot, dense plasma : Feasibility of experiments with ^{201}Hg , J. Exp. Theor. Phys., **66**, 5; 331–335 (1997).
- [And99] A. V. Andreev, R. V. Volkov, V. M. Gordienko, A. M. Dykhne, P. M. Mikheev, A. B. Savel'ev, E. V. Tkalya, R. A. Chalykh and O. V. Chutko, Excitation of low-lying nuclear levels in a nonrelativistic hot dense laser-produced plasma, Quantum Electron., **29**, 1; 55–58 (1999).
- [And00] A. V. Andreev *et al.*, Excitation and decay of low-lying nuclear states in a dense plasma produced by a subpicosecond laser pulse, J. Exp. Theor. Phys., **91**, 6; 1163–1175 (2000).
- [Aru91] R. V. Arutyunayn, L. A. Bol'shov, , S. Dorshakov, V. Kornilo, A. Krivolapov, V. Smirnov and E. Tkalya, Cross-section for excitation of the isomer U-235m in the plasma produced by an electron beam, *Sov. J. Nucl. Phys.*, **53**, 1; 23–26 (1991).
- [Att97] F. Attallah *et al.*, Ionic charge dependence of the internal conversion coefficient and nuclear lifetime of the first excited state in ^{125}Te , Phys. Rev. C, **55**; 1665–1675 (1997).
- [BA79] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche and M. Klapisch, Variance of the distributions of energy levels and of the transition arrays in atomic spectra, Phys. Rev. A, **20**; 2424–2439 (1979).
- [BA85] C. Bauche-Arnoult, J. Bauche and M. Klapisch, Variance of the distributions of energy levels and of the transition arrays in atomic spectra. III. Case of spin-orbit-split arrays, Phys. Rev. A, **31**; 2248–2259 (1985).
- [BA86] C. Bauche-Arnoult, E. Luc-Koenig, J.-F. Wyart, J.-P. Geindre, P. Audebert, P. Monier, J.-C. Gauthier and C. Chenais-Popovics, Interpretation of

- the spectra of a laser-irradiated Au plasma in the 3.0A-4.0A range, *Phys. Rev. A*, **33**, 1 ; 791–793 (1986).
- [Ban91] I. Band and M. B. Trzhaskovskaya, *Phys. Ser.*, **55** ; 39 (1991).
- [Bau95] J. Bauche, C. Bauche-Arnoult, A. Bachelier and W. Goldstein, Evaluation of configuration-interaction effects on atomic transition arrays, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **54**, 1-2 ; 43–51 (1995).
- [Ber91] J. F. Berger, D. M. Gogny and M. S. Weiss, Interaction of optical lasers with atomic nuclei, *Phys. Rev. A*, **43** ; 455–466 (1991).
- [Ber14] L. A. Bernstein *et al.*, Low Energy Neutron Measurements in High Energy Density Plasmas using the National Ignition Facility, *Plasma Fusion Res.*, **9** ; 4404101 (2014).
- [Boh98] A. Bohr and B. Mottelson, *Nuclear Structure*, number v. 1 in Nuclear Structure Vol 1 Single Structure Motion, World Scientific (1998).
- [Bow03] C. Bowen, A. Decoster, C. Fontes, K. Fournier, O. Peyrusse and Y. Ralchenko, Review of the NLTE emissivities code comparison virtual workshop, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **81**, 1-4 ; 71–84 (2003).
- [Bow06] C. Bowen, R. Lee and Y. Ralchenko, Comparing plasma population kinetics codes : Review of the NLTE-3 Kinetics Workshop, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **99**, 1-3 ; 102–119 (2006).
- [Bru84] J. Bruneau, Correlation and relaxation effects in ns 2 -nsnp transitions, *J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys.*, **17**, 15 ; 3009–3028 (1984).
- [BS89] A. Bar-Shalom, J. Oreg, W. H. Goldstein, D. Shvarts and A. Zigler, Super-transition-arrays : A model for the spectral analysis of hot, dense plasma, *Phys. Rev. A*, **40** ; 3183–3193 (1989).
- [BS97] A. Bar-Shalom, J. Oreg and M. Klapisch, Non-LTE superconfiguration collisional radiative model, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **58**, 4-6 ; 427–439 (1997).
- [BS00a] A. Bar-Shalom, J. Oreg and M. Klapisch, The effect of configuration interaction on relativistic transition arrays, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **65**, 1-3 ; 415–428 (2000).
- [BS00b] A. Bar-Shalom, J. Oreg and M. Klapisch, Recent developments in the SCROLL model, *Journal of Quantitative Spectroscopy and Radiative Transfer*, **65**, 1-3 ; 43–55 (2000).
- [Bur57] E. M. Burbidge, G. R. Burbidge, W. A. Fowler and F. Hoyle, Synthesis of the Elements in Stars, *Rev. Mod. Phys.*, **29** ; 547–650 (1957).
- [Bus82] M. Busquet, Mixed model : Non-local-thermodynamic equilibrium, non-coronal-equilibrium simple ionization model for laser-created plasmas, *Phys. Rev. A*, **25**, 4 ; 2302–2323 (1982).
- [Bus85] M. Busquet, D. Pain, J. Bauche and E. Luc-Koenig, Study of X-ray Spectrum of Laser-produced Gold Plasmas, *Phys. Scr.*, **31**, 2 ; 137–148 (1985).

-
- [Bus93] M. Busquet, Radiation-dependent ionization model for laser-created plasmas, *Phys. Fluids B*, **5**, 11 ; 4191–4206 (1993).
- [Can73] G. L. Cano, Secondary electron emission from Au, Mo, and CuBe by high-charge-number laser-produced metal ions, *J. Appl. Phys.*, **44**, 12 ; 5293–5300 (1973).
- [Cla04] G. Claverie, M. M. Aléonard, J. F. Chemin, F. Gobet, F. Hannachi, M. R. Harston, G. Malka, J. N. Scheurer, P. Morel and V. Méot, Search for nuclear excitation by electronic transition in ^{235}U , *Phys. Rev. C*, **70** ; 044303 (2004).
- [Coc99] A. Coc, M.-G. Porquet and F. Nowacki, Lifetimes of ^{26}Al and ^{34}Cl in an astrophysical plasma, *Phys. Rev. C*, **61** ; 015801 (1999).
- [Col73] D. Colombant and G. F. Tonon, X-ray emission in laser-produced plasmas, *J. Appl. Phys.*, **44**, 8 ; 3524–3537 (1973).
- [Cow81] R. D. Cowan, *The Theory of Atomic Structure and Spectra*, University of California Press (1981).
- [Cra84] B. Crasemann, M. H. Chen and H. Mark, Atomic inner-shell transitions, *J. Opt. Soc. Am. B*, **1**, 2 ; 224–231 (1984).
- [Dah00] D. A. Dahl, simion for the personal computer in reflection, *Int. J. Mass Spectrom.*, **200**, 1-3 ; 3–25 (2000).
- [Dau93] R. Dautray and J. Watteau, *La fusion thermonucléaire inertielle par laser*, Eyrolles (1993).
- [Dec94] A. Decoster, *Rapport des activités laser*, Commissariat à l’Energie Atomique (1994).
- [Des89] J. P. Desclaux, The multiconfiguration Dirac-Fock method, *AIP Conf. Proc.*, **189**, 1 ; 265–271 (1989).
- [Dim80] M. S. Dimitrijevic and N. Konjevic, Stark widths of doubly- and triply-ionized atom lines, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **24**, 6 ; 451–459 (1980).
- [Dim86] M. S. Dimitrijevic and N. Konjevic, Simple formulae for estimating Stark widths and shifts of neutral atom lines, *Astron. Astrophys.*, **163** ; 297–300 (1986).
- [Dim87] M. S. Dimitrijevic and N. Konjevic, Simple estimates for Stark broadening of ions lines in stellar plasmas, *Astron. Astrophys.*, **172** ; 345 (1987).
- [Diu89] B. Diu, *Eléments de physique statistique*, Collection Enseignement des sciences, Hermann (1989).
- [Doo78] G. D. Doolen, The nuclear excitation rate for low-lying excited states in ^{237}U and ^{238}U , *Phys. Rev. C*, **18**, 6 ; 2547–2559 (1978).
- [DP14] D. Denis-Petit, Excitations nucléaires dans les plasmas : le cas du ^{84m}Rb , Ph.D. thesis, Université de Bordeaux (2014).

- [Dra87] O. Dragoun and V. Brabec, Some Nuclear and Atomic Properties of ^{201}Hg Determined by Conversion Electron Spectroscopy, *Z. Phys. A.*, **326**; 279–285 (1987).
- [Dzy13] A. Y. Dzyublik, G. Gosselin, V. Méot and P. Morel, Role of screening in Coulomb excitation of nuclei by electrons in hot plasma, *Europhys. Lett.*, **102**, 6; 62001– (2013).
- [Eub63] H. P. Eubank and T. D. Wilkerson, Ion Energy Analyzer for Plasma Measurements, *Rev. Sci. Instrum.*, **34**, 1; 12–18 (1963).
- [Faj01] M. Fajardo, P. Audebert, P. Renaudin, H. Yashiro, R. Shepherd, J. Gauthier and C. Chenais-Popovics, Study of the Ion-Distribution Dynamics of an Aluminum Laser-Produced Plasma with Picosecond Resolution, *Phys. Rev. Lett.*, **86**; 1231–1234 (2001).
- [Far13] C. C. Farnell, Electrostatic Analyzers with Application to Electric Propulsion Testing, in *IEPC-2013-300* (2013).
- [Fau97] G. Faussurier, C. Blancard and A. Decoster, Statistical mechanics of highly charged ion plasmas in local thermodynamic equilibrium, *Phys. Rev. E*, **56**, 3; 3474–3487 (1997).
- [Fle65] H. Fleischmann, D. Ashby and A. Larson, Errors in the use of mass analyzers in plasma physics, *Nucl. Fusion*, **5**, 4; 349 (1965).
- [Flo09] R. Florido, R. Rodriguez, J. M. Gil, J. G. Rubiano, P. Martel, E. Minguez and R. C. Mancini, Modeling of population kinetics of plasmas that are not in local thermodynamic equilibrium, using a versatile collisional-radiative model based on analytical rates, *Phys. Rev. E*, **80**, 5; 056402 (2009).
- [Fon09] C. Fontes, J. Abdallah Jr., C. Bowen, R. Lee and Y. Ralchenko, Review of the NLTE-5 kinetics workshop, *High Energy Density Phys.*, **5**, 1-2; 15–22 (2009).
- [Ger97] V. N. Gerasimov and D. V. Grebennikov, *Phys. At. Nucl.*, **60**; 1780 (1997).
- [Gob06] F. Gobet *et al.*, Absolute energy distribution of hard x rays produced in the interaction of a kilohertz femtosecond laser with tantalum targets, *Rev. Sci. Instrum.*, **77**, 9; 093302 (2006).
- [Gob08] F. Gobet *et al.*, Particle characterization for the evaluation of the ^{181m}Ta excitation yield in millijoule laser induced plasmas, *J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys.*, **41**, 14; 145701 (2008).
- [Gol04] M. Goldberger and K. Watson, *Collision Theory*, Dover books on physics, Dover Publications (2004).
- [Gos04] G. Gosselin and P. Morel, Enhanced nuclear level decay in hot dense plasmas, *Phys. Rev. C*, **70**; 064603 (2004).
- [Gos07] G. Gosselin, V. Méot and P. Morel, Modified nuclear level lifetime in hot dense plasmas, *Phys. Rev. C*, **76**; 044611 (2007).

-
- [Gos09] G. Gosselin, N. Pillet, V. Méot, P. Morel and A. Y. Dzyublik, Nuclear transition induced by low-energy unscreened electron inelastic scattering, *Phys. Rev. C*, **79**, 1; 014604– (2009).
- [Gra74] I. P. Grant, Gauge invariance and relativistic radiative transitions, *J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys.*, **7**, 12; 1458–1475 (1974).
- [Gra80] I. Grant, B. McKenzie, P. Norrington, D. Mayers and N. Pyper, An atomic multiconfigurational Dirac-Fock package, *Comput. Phys. Commun.*, **21**, 2; 207–231 (1980).
- [Gra07] I. Grant, *Relativistic Quantum Theory of Atoms and Molecules : Theory and Computation*, Springer Series on Atomic, Optical, and Plasma Physics, Springer (2007).
- [Gre70] T. S. Green, Space charge effects in plasma particle analyzers, *Plasma Phys.*, **12**, 11; 877–883 (1970).
- [Ham75] W. Hamilton, *The Electromagnetic interaction in nuclear spectroscopy*, North-Holland (1975).
- [Har99] M. R. Harston and J. F. Chemin, Mechanisms of nuclear excitation in plasmas, *Phys. Rev. C*, **59**, 5; 2462–2473 (1999).
- [Har01] M. Harston, Analysis of probabilities for nuclear excitation by near-resonant electronic transitions, *Nucl. Phys. A*, **690**, 4; 447–455 (2001).
- [Har09] M. Harmand, Spectroscopie d'absorption X résolue en temps pour l'étude de la matière dense et tiède, Ph.D. thesis (2009), thèse de doctorat dirigée par Dorchie, Fabien et Peyrusse, Olivier Astrophysique, plasma, corpuscules Bordeaux 1 2009.
- [Hau84] A. Hauer, W. C. Mead, O. Willi, J. D. Kilkenny, D. K. Bradley, S. D. Tabatabaei and C. Hooker, Measurement and Analysis of Near-Classical Thermal Transport in One-Micron Laser-Irradiated Spherical Plasmas, *Phys. Rev. Lett.*, **53**, 27; 2563–2566 (1984).
- [Hut67] R. Hutter, *"Chapitre 3.1 Beams with Space-Charge" dans Focusing of Charged Particles*, New York : Academic Press (1967).
- [Iza79] Y. Izawa and C. Yamanaka, Production of ^{235m}U by nuclear excitation by electron transition in a laser produced uranium plasma, *Phys. Lett. B*, **88**, 12; 59 – 61 (1979).
- [Jac91] S. Jacquemot and A. Decoster, Z scaling of collisional Ne-like X-ray lasers using exploding foils : Refraction effects, *Laser Part. Beams*, **9**, 02; 517–526 (1991).
- [Jin14] Q. Y. Jin, H. Y. Zhao, S. Sha, J. J. Zhang, Z. M. Li, W. Liu, X. Z. Zhang, L. T. Sun and H. W. Zhao, Study on space charge effect in an electrostatic ion analyzer applied to measure laser produced ions, *Rev. Sci. Instrum.*, **85**, 3; 033307 (2014).

- [Kap06] F. Kappeler and A. Mengoni, Nuclear input for the s process : progress with experiments and theory, Nucl. Phys. A, **777**, 0 ; 291–310 (2006).
- [Kel92] R. Kelly, Gas dynamics of the pulsed emission of a perfect gas with applications to laser sputtering and to nozzle expansion, Phys. Rev. A, **46**; 860–874 (1992).
- [Key79] M. Key, *The physics of the super-dense region*, Proceedings of the XXth Summer School in Physics, St. Andrew, Ecosse (1979).
- [Kis05] S. Kishimoto, Y. Yoda, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki and M. Seto, Evidence for nuclear excitation by electron transition on ^{193}Ir and its probability, Nucl. Phys. A, **748**, 1-2; 3–11 (2005).
- [Kis06] S. Kishimoto, Y. Yoda, Y. Kobayashi, S. Kitao, R. Haruki, R. Masuda and M. Seto, Nuclear excitation by electron transition on ^{197}Au by photoionization around the K absorption edge, Phys. Rev. C, **74**, 3; 031301–(2006).
- [Kla91] N. Klay, F. Käppeler, H. Beer and G. Schatz, Nuclear structure of ^{176}Lu and its astrophysical consequences. II. ^{176}Lu , a thermometer for stellar helium burning, Phys. Rev. C, **44**; 2839–2849 (1991).
- [Kla07] M. Klapisch, M. Busquet and A. Bar-Shalom, A New And Improved Version Of HULLAC, AIP Conf. Proc., **926**, 1; 206–215 (2007).
- [Kno00] G. Knoll, *Radiation Detection and Measurement*, Wiley (2000).
- [Kra98] J. Krasa, E. Woryna, M. P. Stockli, S. Winecki and B. P. Walch, Gain of windowless electron multipliers 226EM and EMI 9643/2B for highly charged Ta ions, Rev. Sci. Instrum., **69**, 1; 95–100 (1998).
- [Kra03] J. Krasa and K. Jungwirth, Highly charged ions generated with intense laser beams, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **205**, 0 ; 355–359 (2003).
- [Kra12] J. Krasa *et al.*, Shot-to-shot reproducibility in the emission of fast highly charged metal ions from a laser ion source), Rev. Sci. Instrum., **83**, 2; 02B302 (2012).
- [Lá03] L. Láska *et al.*, Generation of multiply charged ions at low and high laser-power densities, Plasma Phys. Controlled Fusion, **45**, 5; 585–599 (2003).
- [Lan85] E. Landau and E. Lifchitz, *Mécanique statistique*, Mir (1985).
- [Lee97] R. W. Lee, J. Nash and Y. Ralchenko, Review of the NLTE kinetics code workshop, J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer, **58**, 4-6; 737–742 (1997).
- [Mé07] V. Méot, J. Aupiais, P. Morel, G. Gosselin, F. Gobet, J. N. Scheurer and M. Tarisien, Half-life of the first excited state of ^{201}Hg , Phys. Rev. C, **75**; 064306 (2007).
- [Mé09] V. Méot, *Excitation nucléaire dans les plasmas*, Habilitation à diriger les recherches (2009).

-
- [Man71] J. B. Mann and W. R. Johnson, Breit Interaction in Multielectron Atoms, *Phys. Rev. A*, **4** ; 41–51 (1971).
- [Mau08] S. Mauger, Conception d'un analyseur électrostatique dans le cadre de l'observation de l'effet NEET, Master's thesis, Institut d'optique (2008).
- [Mor73] M. Morita, Nuclear Excitation by Electron Transition and Its Application to Uranium 235 Separation, *Prog. Theor. Phys.*, **49** ; 1574–1586 (1973).
- [Mor82] R. M. More, Electronic energy-levels in dense plasmas, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **27**, 3 ; 345–357 (1982).
- [Mor88] R. M. More, G. B. Zimmerman and Z. Zinamon, Dielectronic recombination in the average-atom model, *AIP Conf. Proc.*, **168**, 1 ; 33–41 (1988).
- [Mor04] P. Morel, V. Méot, G. Gosselin, D. Gogny and W. Younes, Evaluation of nuclear excitation by electronic transition in ^{235}U plasma at local thermodynamic equilibrium, *Phys. Rev. A*, **69**, 6 ; 063414 (2004).
- [Mro99] W. Mroz, D. Fry, M. Stockli and S. Winecki, Micro channel plate gains for Ta10+-Ta44+ ions, measured in the energy range from 3.7keV/q up to 150.7keV/q, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. A*, **437**, 2-3 ; 335–345 (1999).
- [Ohn03] M. Ohno, Correlation between the relaxation energy shift and the hole-lifetime width, *J. Electron Spectrosc. Relat. Phenom.*, **131**, 0 ; 117–124 (2003).
- [Ola97] S. Olariu, A. Olariu and V. Zoran, Emission of γ rays by x-ray electron-nuclear transitions, *Phys. Rev. C*, **56** ; 381–387 (1997).
- [Pai12] J.-C. Pain, F. Gilleron, J. Bauche and C. Bauche-Arnoult, Statistics of electric-quadrupole lines in atomic spectra, *J. Phys. B : At., Mol. Opt. Phys.*, **45**, 13 ; 135006 (2012).
- [Pai14] J.-C. Pain, Communication privée (2014).
- [Pau75] H. Pauli and U. Raff, A computer program for internal conversion coefficients and particle parameters, *Comput. Phys. Commun.*, **9**, 6 ; 392–407 (1975).
- [Pey00] O. Peyrusse, A superconfiguration model for broadband spectroscopy of non-LTE plasmas, *Journal of Physics B : Atomic, Molecular and Optical Physics*, **33**, 20 ; 4303 (2000).
- [Rou96] I. Roudskoy, General features of highly charged ion generation in laser-produced plasmas, *Laser Part. Beams*, **14**, 03 ; 369–384 (1996).
- [Roz72] B. F. Rozsnyai, Relativistic Hartree-Fock-Slater Calculations for Arbitrary Temperature and Matter Density, *Phys. Rev. A*, **5**, 3 ; 1137–1149 (1972).
- [Rub07] J. Rubiano, R. Florido, C. Bowen, R. Lee and Y. Ralchenko, Review of the 4th NLTE Code Comparison Workshop, *High Energy Density Phys.*, **3**, 1-2 ; 225–232 (2007).

- [Sak05] S. Sakabe, K. Takahashi, M. Hashida, S. Shimizu and T. Iida, Elements and their transitions feasible for NEET, *At. Data Nucl. Data Tables*, **91**, 1; 1 – 7 (2005).
- [Sal98] D. Saltzman, *Atomic Physics in hot plasmas*, Oxford University (1998).
- [Sha99] B. Sharkov, A. Shumshurov., I. Roudskoy and A. Kilpio, Highly charged ions from Nd-laser produced plasma of medium and high-Z targets, *Laser Part. Beams*, **17**, 04; 741–747 (1999).
- [Sib91] D. Sibold and H. M. Urbassek, Kinetic study of pulsed desorption flows into vacuum, *Phys. Rev. A*, **43**; 6722–6734 (1991).
- [Spi13] L. Spitzer, *Physics of Fully Ionized Gases : Second Revised Edition*, Dover Publications (2013).
- [Tka91] E. V. Tkalya, Theoretical interpretation of experimental results on excitation of the isomer ^{235}U (76.8 eV) in a plasma, *JETP Lett.*, **53**; 463–466 (1991).
- [Tka92] E. Tkalya, Nuclear excitation in atomic transitions (NEET process analysis), *Nucl. Phys. A*, **539**, 2; 209–222 (1992).
- [Tka04] E. V. Tkalya, Mechanisms for the Excitation of Atomic Nuclei in Hot Dense Plasma, *Laser Phys.*, **14**; 360–377 (2004).
- [Tka12] E. V. Tkalya, E. V. Akhrameev, R. V. Arutyunayn, L. A. Bol'shov and P. S. Kondratenko, Cross sections of electron excitation of atomic nuclei in plasma, *Phys. Rev. C*, **85**; 044612 (2012).
- [Tor02] L. Torrisi, S. Gammino, L. Andò and L. Laska, Tantalum ions produced by 1064 nm pulsed laser irradiation, *J. Appl. Phys.*, **91**, 7; 4685–4692 (2002).
- [Tor06a] L. Torrisi and S. Gammino, Non-equilibrium Ta plasmas produced by fast pulsed lasers, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B*, **243**; 143–148 (2006).
- [Tor06b] L. Torrisi, S. Gammino, L. Andó, L. Laska, J. Krasa, K. Rohlena, J. Ullschmied, J. Wolowski, J. Badziak and P. Parys, Equivalent ion temperature in Ta plasma produced by high energy laser ablation, *J. Appl. Phys.*, **99**, 8; 083301 (2006).
- [Wag09] E. Wagner and P. Morel, Prise en compte de calculs multiconfiguration dans les phénomènes d'excitation nucléaire, Master's thesis, Centrale Paris (2009).
- [Wor96] E. Woryna, P. Parys, J. Wołowski and W. Mróz, Corpuscular diagnostics and processing methods applied in investigations of laser-produced plasma as a source of highly ionized ions, *Laser Part. Beams*, **14**, 03; 293–321 (1996).
- [Zha14] H. Y. Zhao, Q. Y. Jin, S. Sha, J. J. Zhang, Z. M. Li, W. Liu, L. T. Sun, X. Z. Zhang and H. W. Zhao, The study towards high intensity high charge state laser ion sources), *Rev. Sci. Instrum.*, **85**, 2; 02B910 (2014).

-
- [Zim80] G. Zimmerman and R. More, Pressure ionization in laser-fusion target simulation, *J. Quant. Spectrosc. Radiat. Transfer*, **23**, 5 ; 517–522 (1980).

Détermination des éléments de matrice nucléaires à partir de la mesure de la demi-vie de l'état

La démarche pour déterminer les éléments de matrice nucléaire réduit est la suivante. La demi-vie d'un état nucléaire s'exprime par,

$$\begin{aligned} t_{1/2} &= \frac{\ln 2}{\lambda_\gamma + \lambda_{CI}} \\ &= \frac{\ln 2}{\lambda_\gamma(1 + \alpha)} \end{aligned} \quad (\text{A.1})$$

où λ_γ est le taux de transition radiatif et λ_{CI} , le taux de désexcitation par conversion interne. Le taux de désexcitation radiatif peut se décomposer par une contribution de chaque multipolarité,

$$\lambda_\gamma = \lambda_\gamma^{M1} + \lambda_\gamma^{E2} \quad (\text{A.2})$$

On définit alors le coefficient de mélange, $\delta^2(E2/M1)$ comme le rapport du taux de désexcitation radiatif E2 sur M1,

$$\delta^2(E2/M1) = \frac{\lambda_\gamma^{E2}}{\lambda_\gamma^{M1}} \quad (\text{A.3})$$

Le tableau 1.1 présente une comparaison entre l'intensité relative du taux de conversion interne pour différentes orbitales atomiques calculées et déterminées expérimentalement. L'accord entre l'expérience et la théorie est très bon, le coefficient de conversion total α est ainsi déterminé théoriquement. Le coefficient de mélange $\delta^2(E2/M1)$ a été mesuré par V.N Gerasimov et al [Ger97] et vaut $2,10(\pm 0,55) \times 10^{-4}$ et le coefficient de conversion interne calculé par Band et Trzhaskovskaya [Ban91], $\alpha = 6,50(\pm 1,25) \times 10^4$ où l'erreur tient compte de l'incertitude sur le coefficient de mélange.

L'élément de matrice nucléaire réduit $B_{I_2 \rightarrow I_1}(E/M L)$ intervient dans l'expression du taux de transition radiatif $\lambda_\gamma(E/M L)$,

$$\lambda_\gamma(E/M L) = \frac{8\pi}{(2L+1)!!^2} \frac{L+1}{L} \left(\frac{E_\gamma}{\hbar c} \right)^{2L+1} \frac{B_{I_2 \rightarrow I_1}(E/M L)}{\hbar} \quad (\text{A.4})$$

Ainsi, en connaissant la valeur de la demi-vie de l'état ($t_{1/2}=81$ ns [Mé07]) et le coefficient de conversion interne $\alpha=6,50(\pm 1,25)\times 10^4$, on peut calculer le taux de transition radiatif total λ_γ (cf. équation (A.1)). Ensuite, à partir du coefficient de mélange $\delta^2(E2/M1)=2,10(\pm 0,55)\times 10^{-4}$, on en déduit la valeur du taux de transition radiatif de chaque multipolarité par la relation (A.2). L'élément de matrice nucléaire réduit de chaque multipolarité, $B_{I_2\rightarrow I_1}(E/M L)$, est déterminé par (A.4).

Description du modèle de l'atome moyen

Dans le modèle de l'atome moyen [Roz72], l'atome est contenu dans une sphère, dont le rayon R_i , appelé rayon de Wigner-Seitz, dépend de la densité du plasma ρ . Ce rayon est déterminé par :

$$R_i = \left(\frac{3}{4\pi\rho} \right)^{1/3}, \quad (\text{B.1})$$

et permet de définir les conditions aux limites sur les fonctions d'onde en $r = R_i$ (dérivée nulle, exponentielle décroissante afin que la fonction d'onde s'annule à l'infini...). Les électrons libres et liés sont contenus dans le volume de cette sphère.

Le point de départ est le modèle de Thomas-Fermi qui permet de calculer, pour un atome isolé, le potentiel électrostatique $V(r)$ et le potentiel chimique d'un atome μ . Ce potentiel est ensuite utilisé dans l'équation de Dirac (B.2), afin de calculer, par minimisation, l'énergie E_{nlj} et les fonctions d'onde ψ_{nlj} des orbitales électroniques.

$$\left(c\vec{\alpha} \cdot \vec{p} + \beta mc^2 + V(r) \right) \psi_{nlj}(r) = E_{nlj} \psi_{nlj}(r) \quad (\text{B.2})$$

Les probabilités d'occupation des orbitales nlj sont issues de la statistique de Fermi-Dirac et s'écrivent :

$$P_{nlj} = \frac{1}{1 + e^{\beta(E_{nlj} - \mu)}} \quad (\text{B.3})$$

avec $\beta = \frac{1}{kT_e}$, où T_e est la température du plasma. A partir de ces probabilités d'occupation, on détermine le nombre moyen d'électrons sur les orbitales :

$$N_{nlj} = P_{nlj} g_{nlj} \quad (\text{B.4})$$

où g_{nlj} est la dégénérescence d'une orbitale nlj donnée.

La densité d'électrons liés n_e^b (cm^{-3}) et la densité d'électrons libres n_e^f (cm^{-3}) se calculent à partir des relations (B.5) et (B.6) :

$$n_e^b(r) = \sum_{nlj} P_{nlj} |\psi_{nlj}(r)|^2 \quad (\text{B.5})$$

$$n_e^f(r) = \frac{1}{2\pi^2} \left(\frac{2mc^2 T_e}{\hbar^2 c^2} \right)^{3/2} F_{1/2} \left(\frac{eV(r) + \mu}{T_e}; \left| \frac{eV(r)}{T_e} \right| \right) \quad (\text{B.6})$$

où $F_{1/2}(x; \beta)$ est l'intégrale incomplète de Fermi-Dirac :

$$F_j(x, \beta) = \int_{\beta}^{\infty} \frac{y^j dy}{1 + \exp(y - x)} \quad (\text{B.7})$$

L'état de charge moyen \bar{Q} est déterminé en intégrant la densité électronique libre sur le volume de la sphère :

$$\bar{Q}(T_e, \rho) = \int_0^{R_i} n_e^f(r, \mu) d^3r \quad (\text{B.8})$$

La densité électronique totale $n_e(r)$ s'exprime comme la somme de la densité électronique libre et liée (B.9). Elle permet de calculer un nouveau potentiel électrostatique $V_e(r)$ (B.10) et, via la neutralité de la sphère ionique, un nouveau potentiel chimique μ (B.11).

$$n_e(r) = n_e^b(r) + n_e^f(r) \quad (\text{B.9})$$

$$V_e(r) = -4\pi e \left(\frac{1}{r} \int_0^r n_e(r') r'^2 dr' + \int_r^{R_i} n_e(r') r' dr' \right) \quad (\text{B.10})$$

$$Z = \int_0^{R_i} n_e(r, \mu) d^3r \quad (\text{B.11})$$

avec Z le numéro atomique de l'élément. Le potentiel total s'obtient en sommant $V_e(r)$ avec le potentiel nucléaire $V_N(r)$ (B.12).

$$V(r) = V_e(r) + V_N(r) = V_e(r) + \frac{Ze}{r} \quad (\text{B.12})$$

La démarche est ensuite continuée jusqu'à la convergence du potentiel.

Approximation binomiale de la probabilité des configurations

L'énergie d'une configuration peut se calculer par la relation suivante :

$$E(C) = \sum_k N_k U_k + \frac{1}{2} \sum_k \sum_{k'} N_k (N_{k'} - \delta_{kk'}) V_{kk'} \quad (\text{C.1})$$

A l'équilibre thermodynamique, la probabilité d'existence d'une configuration C est déterminée par le calcul de la fonction de partition Z_C :

$$P(C) = \frac{1}{Z_C} g_C \exp \left(-\beta \left[E(C) - \sum_k \mu N_k \right] \right) \quad (\text{C.2})$$

où g_C est le poids statistique de la configuration et s'exprime par : $\prod_k \binom{g_k}{N_k}$ avec g_k et N_k la dégénérescence et l'occupation de l'orbitale k . Le terme μ désigne le potentiel chimique, Z_C la fonction de partition du système et $\beta = \frac{1}{kT}$. On développe l'énergie de la configuration $E(C)$ dans (C.2) et on obtient :

$$P(C) = \frac{1}{Z_C} \prod_k \binom{g_k}{N_k} \exp \left(-\beta \left[\sum_k N_k (U_k - \mu) + \frac{1}{2} \sum_k \sum_{k'} N_k (N_{k'} - \delta_{kk'}) V_{kk'} \right] \right) \quad (\text{C.3})$$

Or en remarquant que :

$$\exp(-\beta(U_k - \mu)) = \bar{P}_k (1 - \bar{P}_k)^{-1} \quad (\text{C.4})$$

où \bar{P}_k est la probabilité moyenne d'occupation dans l'orbitale k issue de la probabilité de Fermi-Dirac. On peut maintenant ré-exprimer la quantité (C.4) telle que :

$$\bar{P}_k (1 - \bar{P}_k)^{-1} \rightarrow \bar{P}_k^{N_k} (1 - \bar{P}_k)^{g_k - N_k} \quad (\text{C.5})$$

Ce changement n'affecte pas la probabilité car elle s'élimine par la renormalisation par la fonction de partition Z_C . Ainsi l'expression (C.2) devient :

$$P(C) = \frac{1}{Z_C} P_B(C) \exp \left(-\beta \left[\frac{1}{2} \sum_k \sum_{k'} N_k (N_{k'} - \delta_{kk'}) V_{kk'} \right] \right) \quad (\text{C.6})$$

avec $P_B(C)$ la probabilité binomiale de la configuration C :

$$P_B(C) = \prod_k \binom{g_k}{N_k} \bar{P}_k^{N_k} (1 - \bar{P}_k)^{g_k - N_k} \quad (\text{C.7})$$

L'expression (C.6) de la probabilité de la configuration est le produit de la probabilité binomiale par une exponentielle contenant l'interaction coulombienne entre électrons.

L'approximation des électrons indépendants consiste à négliger, dans l'expression de la probabilité (C.6), l'interaction entre les électrons. La probabilité de la configuration est alors égale à la probabilité binomiale :

$$P(C) = P_B(C) \quad (\text{C.8})$$

avec $Z_C = 1$ car la probabilité binomiale est déjà elle-même normalisée. On peut alors calculer facilement la variance de l'occupation d'une orbitale k donnée, qui est alors donnée directement par l'expression de la variance binomiale soit :

$$\sigma_k^2 = g_k \bar{P}_k (1 - \bar{P}_k) = \bar{N}_k (1 - \bar{P}_k) \quad (\text{C.9})$$

Résumé :

L'utilisation des lasers de puissance permet l'étude des propriétés de la matière dans des conditions extrêmes de température et de densité. En effet, l'interaction d'un laser de puissance sur une cible crée un plasma dont la température est suffisamment grande pour atteindre des degrés d'ionisation élevés. Ces conditions peuvent permettre, via divers processus, d'exciter le noyau dans un état nucléaire et notamment dans un état isomère. Un noyau d'intérêt pour étudier ces phénomènes est le ^{201}Hg . Ce travail de thèse s'inscrit dans le cadre du dimensionnement d'une expérience visant la mise en évidence de l'excitation du ^{201}Hg dans un plasma laser. La première partie de ce manuscrit présente la détermination des taux d'excitation nucléaire dans les plasmas. Depuis une dizaine d'années les taux d'excitation sont déterminés en utilisant le modèle de l'atome moyen. Afin de valider ce modèle, un code, appelé ADAM (Au-Delà de l'Atome Moyen), a été développé afin de calculer le taux d'excitation nucléaire en DCA (Detailed Configuration Accounting). Il nous permettra d'en déduire un domaine thermodynamique en température et densité où les taux d'excitation déterminés avec le modèle de l'atome moyen sont pertinents. La deuxième partie présente le couplage des taux d'excitation nucléaire avec un code hydrodynamique afin d'en déduire, pour différentes intensités laser, le nombre de noyaux qu'il serait possible d'exciter par tir laser. Enfin, dans une dernière partie, les premières approches expérimentales qui serviront au dimensionnement d'une expérience sur une installation laser sont présentées. Ces approches sont basées sur la détection et la détermination de la quantité d'ions multichargés obtenue loin de la cible (~ 80 cm). Pour cela, un déviateur électrostatique a été utilisé.

Mots clés :

Excitation nucléaire ; laser/plasma ; NEET ; hydrodynamique ; déviateur électrostatique

Abstract :

The use of high power lasers allows the study of the properties of matter in extreme conditions of temperature and density. Indeed, the interaction of a power laser and a target creates a plasma in which the temperature is high enough to reach important degrees of ionization. These conditions can allow the excitation of the nucleus. A nucleus of interest to study the processes of nuclear excitation is the ^{201}Hg . This work aims to design an experiment where the ^{201}Hg excitation will be observed in a plasma produced by a high power laser. The first part of this manuscript presents the calculation of the expected nuclear excitation rates in the plasma. For about ten years, nuclear excitation rates have been calculated using the average atom model. To validate this model a code named ADAM (french acronym for Beyond The Average Atom Model) was developed to calculate the nuclear excitation rates under the DCA (Detailed Configuration Accounting) hypothesis. ADAM allows us to deduce the thermodynamical domain where the nuclear excitation rates determined with the average atom model are relevant. The second part of this manuscript presents the coupling of the excitation rate calculation with a hydrodynamic code to calculate the number of excited nuclei produced in one laser shot for different laser intensity. Finally, in the last part, first experimental approaches which will be used to design an experiment on a laser installation are presented. These approaches are based on the detection and determination of the amount of multicharged ions obtained far from the target (~ 80 cm). For this purpose, an electrostatic analyzer was used.

Keywords :

Nuclear excitation ; laser/plasma ; NEET ; hydrodynamic ; electrostatic analyzer
